THESE

PRESENTEE POUR L'OBTENTION

DU

DIPLOME DE DOCTEUR DE 3ème CYCLE

A

L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

- PARIS 6 -

SPECIALITE : PHYSIQUE ATOMIQUE ET MOLECULAIRE

MENTION :

PAR Monsieur Christophe BLONDEL

SPECTROSCOPIE DE PHOTOIONISATION

EN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ATOME D'TTTERBIUM

SOUTENUE LE 25 janvier 1983 **DEVANT LA COMMISSION COMPOSEE DE :**

MM.	S.	HAROCHE	Président
	R.-J.	CHAMPEAU	
	C.	DELSART	
	M.	GAILLARD	
	S.	LIBERMAN	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

THESE

PRESENTEE POUR L'OBTENTION

DU

DIPLOME DE DOCTEUR DE 3ème CYCLE

A

L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

- PARIS 6 -

SPECIALITE : PHYSIQUE ATOMIQUE ET MOLECULAIRE

MENTION :

PAR Monsieur Christophe BLONDEL

SPECTROSCOPIE DE PHOTOIONISATION

EN CHAMP ELECTRIQUE DE L'ATOME D'TTTERBIUM

SOUTENUE LE 25 janvier 1983 DEVANT LA COMMISSION COMPOSEE DE :

MM. S. HAROCHE Président

R.-J. CHAMPEAU

C. DELSART

M. GAILLARD

S. LIBERMAN

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION 1

Chapitre I : DESCRIPTIONS THEORIQUES 7

I.1 Unités 8

I.2 La structure de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique 9

I.2.1 Potentiels 9

I.2.2 Traitement quantique 11

a) Symétries conservées dans l'effet Stark 11

b) Equations du mouvement 12

c) Traitement perturbatif 14

d) Traitements non perturbatifs 16

e) calcul exact 20

I.2.3 Du rôle de la limite d'ionisation en champ nul.. 21

I.3 Prévisions théoriques pour la section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique 24

I.3.1 A partir de l'état fondamental de l'hydrogène (ou d'un état s) 24

I.3.2 A étages, dans l'hydrogène 27

I.3.3 Des alcalins 29

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543515_0012

I.3.4 De l'ytterbium 30

I.4 Conclusions 32

Chapitre II : MATERIEL EXPERIMENTAL 33

II.1 Principe des expériences sur l'ytterbium 34

II.1.1 Choix de l'ytterbium 34

II.1.2 Choix des excitations et des polarisations 36

II.1.3 Choix de la méthode 39

II.2 Description du jet atomique 40

II.2.1 L'enceinte 40

II.2.2 Le four 42

II.2.3 Le condensateur 43

II.3 L'excitation à plusieurs étages par lasers 45

II.3.1 Description générale des lasers 45

a) Laser continu à 555,6 nm 45

b) Lasers à colorant pulsés 47

c) Le laser paramétrique 50

II.3.2 Les expériences à trois étages 52

a) Expériences via $^1S_0$ et $^3S_1$ 52

b) Expérience via $^1D_2$ 53

II.3.3 Expérience de photoionisation à partir de l'état $6s6p\ ^1P^o_1$ 56

II.4 La détection 57

II.4.1 La récolte des ions 57

II.4.2 Le détecteur 57

II.4.3 Le traitement du signal 58

II.4.4 Amélioration du rapport signal sur bruit et enregistrement 59

Chapitre III : RESULTATS 61

III.1 Préliminaires 61

III.1.1 Caractéristiques générales des spectres 61

III.1.2 Phénomènes parasites 63

III.1.3 Plan de l'étude 66

III.2 Modulation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul 67

III.2.1 Photoionisation à partir du niveau $^1S_0$ 68

a) Polarisations 68

b) Taux de modulation 69

c) Période de modulation 70

III.2.2 Photoionisation à partir du niveau $^3S_1$ 72

III.2.3 Photoionisation à partir du niveau $^1P^o_1$ 74

III.2.4 Photoionisation à partir du niveau $^1D_2$ 77

III.3 Structure du spectre de photoionisation au-dessous de la limite d'ionisation en champ nul 81

III.3.1 Subsistance de niveaux Stark quasi-liés 81

III.3.2 Positions des pics de photoionisation 82

III.3.3 Identification des pics de photoionisation .. 84

a) Dans la région d'énergie moyenne 84

b) Dans la région de basse énergie 85

III.3.4 Limites du calcul au quatrième ordre. Corrections 85

III.3.5 Evolution des résonances avec le champ électrique et la polarisation 86

III.3.6 Comparaison générale expérience-théorie de la position en énergie des résonances Stark 89

III.4 Niveaux perturbateurs 92

III.4.1 Niveaux autoionisés 93

a) Perturbateurs pairs 93

b) Perturbateur impair 96

III.4.2 Niveaux autoionisés en présence d'un champ électrique (autoionisation forcée) 97

a) Perturbateurs pairs 97

b) Perturbateurs impairs 97

CONCLUSION ET PERSPECTIVES 102

1 - Bilan des résultats obtenus 102

2 - Projet d'une expérience de photoionisation différentielle 105

2.1 Principe 105

2.2 Ordres de grandeur 106

3 - Conclusion 108

APPENDICE A 109

APPENDICE B 114

APPENDICE C 121

REFERENCES 124

INTRODUCTION

La mise au point des lasers accordables, sources de lumière de grande densité spectrale de puissance, a permis le développement rapide de l'étude expérimentale des états atomiques très excités, ou "états de Rydberg" [1]. Ces états atomiques dans lesquels l'électron extérieur est porté à un niveau de nombre quantique principal n élevé, ont des caractéristiques communes qui leur donnent des propriétés très différentes de celles des états proches du niveau fondamental. Principalement les atomes de Rydberg sont des atomes grands (le rayon atomique est proportionnel à n^2) et fragiles (l'énergie de liaison de l'électron extérieur est proportionnelle à $\frac{1}{n^2}$), ils sont très sensibles aux champs extérieurs et il suffit d'une petite quantité d'énergie pour les ioniser.

La possibilité de préparer de tels atomes a donné un regain d'intérêt à l'étude de l'effet Stark ; en effet, les champs électriques continus qui peuvent être créés facilement au laboratoire (quelques kilovolts par

centimètre) sont très petits par rapport aux champs de liaison des niveaux profonds de l'atome, mais apparaissent comme des champs intenses pour les états de Rydberg.

Première application de cette propriété, l'ionisation par une impulsion de champ électrique est devenue une méthode classique de détection de ces états, en particulier dans les expériences de spectroscopie d'absorption laser qui, par exemple, permettent d'observer la série de niveaux np du rubidium jusqu'à des valeurs de n proches de 80 [2]. La méthode a l'inconvénient de détruire les espèces étudiées, mais elle peut être sélective car, à champ électrique croissant, les niveaux de n élevé, dont le seuil d'ionisation (champ électrique nécessaire pour les briser) est plus faible, s'ionisent les premiers [3].

Le phénomène d'ionisation par champ électrique est cependant un phénomène compliqué : l'atome, porté en champ nul à une certaine énergie, puis soumis à un champ électrique croissant, n'a plus la même énergie au moment de l'ionisation et, pour comprendre son évolution, il est nécessaire d'étudier la structure statique des niveaux d'atomes soumis à un champ électrique, au voisinage de leur limite d'ionisation en champ nul.

Les diagrammes Stark, qui donnent, à nombre quantique magnétique fixé, la position des niveaux d'énergie de l'atome en fonction du champ appliqué ont été construits dans les alcalins au voisinage de l'énergie correspondant à $n = 15$ [4]. Les diagrammes calculés par diagonalisation locale de l'hamiltonien Stark coïncident parfaitement avec ces diagrammes expérimentaux, leur caractéristique commune et essentielle est que les

niveaux d'énergie ne s'y croisent pas : des anticroisements remplacent les croisements de niveaux des diagrammes Stark de l'hydrogène, qui résultent d'une symétrie particulière du potentiel coulombien. La connaissance de ces anticroisements permet de prévoir l'évolution des états de Rydberg d'un atome à plusieurs électrons dans un champ électrique croissant au cours du temps.

Si l'accroissement du champ électrique est lent, l'énergie de l'atome suit continûment les variations du niveau auquel il a été porté en champ nul (l'évolution est adiabatique), et l'ionisation a lieu tout d'un coup lorsque le champ électrique atteint le seuil d'ionisation de ce niveau. Si l'accroissement du champ électrique est rapide, l'atome peut effectuer des transitions au voisinage des anticroisements de niveaux (l'évolution devient diabatique), et l'ionisation d'atomes dans le même état initial peut fournir plusieurs signaux d'ionisation successifs, à des valeurs différentes du champ électrique. Cet effet a été mis en évidence dans le sodium [5], et étudié récemment dans l'indium [6].

Parmi les exemples cités, distinguons bien les deux types d'expériences mettant en jeu un champ électrique et des atomes excités. Les premières [2,3,5,6] expériences d'ionisation par champ consistent à appliquer un champ électrique à des atomes préalablement excités, l'effet du champ étant d'ioniser les niveaux élevés ; dans les secondes [4], qui étudient la structure des atomes soumis à un champ électrique, l'excitation a lieu en présence du champ, dont l'effet apparaît alors comme un abaissement de la limite d'ionisation. Nous n'envisagerons désormais que des expériences de ce type, en champ électrique constant.

En présence d'un champ électrique apparaît donc une nouvelle limite d'ionisation, d'énergie inférieure à celle de la limite en champ nul ; entre les deux, la structure du spectre atomique ne disparaît pas complètement, on observe des résonances de photoionisation qui traduisent l'existence de niveaux autoionisés, dont le diagramme en fonction du champ appliqué prolonge le diagramme Stark des niveaux liés [7]. Ces résonances de photoionisation en présence d'un champ électrique peuvent être très étroites [8] et des expériences à haute résolution dans le rubidium [9] ont mis en évidence l'asymétrie de certaines d'entre elles, caractéristique du couplage d'un niveau discret et d'un continuum [10]. Des résonances de photoionisation fines ont encore été observées dans le sodium à des énergies proches de la limite d'ionisation en champ nul [11].

La structure des spectres de photoionisation en champ électrique d'alcalins a récemment fait l'objet de la thèse de A. Taleb [12] qui montre, en particulier, que les résonances de niveaux autoionisés apparaissent avec des profils très différents suivant les polarisations de lumière excitatrice utilisées [13].

Un autre trait caractéristique de ces spectres de photoionisation en champ électrique, découvert sur le rubidium, est la persistance de résonances de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul [14]. La succession de ces résonances, lorsque l'énergie croît, forme une modulation de la section efficace de photoionisation, de période croissante en fonction du champ électrique appliqué. La profondeur de cette modulation dépend critiquement de la polarisation de la lumière photoionisante par rapport à la direction du champ : sur les spectres de

photoionisation à partir de l'état fondamental du rubidium, elle n'est mesurable qu'en polarisation π , en polarisation σ la modulation n'apparaît pas.

Des observations similaires ont été faites sur les spectres de photoionisation à deux étages des atomes de sodium [11,15] et de baryum [15] ; sur ce dernier élément la modulation de la section efficace de photoionisation en champ électrique au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul apparaît principalement lorsque les deux étages sont excités en polarisation π .

Le problème de la nature de cette modulation est souvent résumé par la question : "modulation de la densité d'états finals ou modulation de la densité de force d'oscillateur ?" . Précisons. La quantité accessible à l'expérience est la densité de force d'oscillateur, et la modulation observée est de toutes façons une modulation de la densité de force d'oscillateur. Le problème est de déterminer si elle l'est exclusivement ou si elle reflète essentiellement une modulation préexistante de la densité d'états finals en fonction de l'énergie.

Dans la seconde hypothèse, la présence ou l'absence de modulation ne dépendent que de l'état final de l'atome dans le continuum de photoionisation ; dans la première, la modulation dépend aussi de l'état de départ et de la polarisation utilisée pour l'excitation.

L'étude théorique des sections efficaces de photoionisation en champ électrique de l'hydrogène tranche en faveur de l'interprétation selon laquelle la modulation de densité de force d'oscillateur observée est une

modulation de la densité de force d'oscillateur seulement, due principalement à des effets de symétrie dans la transition et non à la modulation de la densité d'états finals. Malheureusement, les premières règles de sélection pour la modulation tirées de cette étude [16] ne s'accordaient pas du tout avec les résultats obtenus par la photoionisation à deux étages du baryum [15].

Il était donc nécessaire de poursuivre les expériences de photoionisation en présence d'un champ électrique sur un atome dont les mêmes états du continuum pussent être atteints à partir d'états de départ différents, sans que l'interprétation des résultats fût compliquée par des effets de structure fine, comme c'est le cas dans les alcalins. C'est pourquoi nous avons réalisé l'étude expérimentale de la photoionisation en champ électrique à deux ou trois étages de l'atome d'ytterbium, pour observer des spectres de photoionisation dans des conditions de moment cinétique initial, de polarisation et de nombre quantique magnétique final aussi variées que possible.

Le Chapitre I résume les différentes descriptions théoriques qui ont été faites pour expliquer la structure des spectres de photoionisation en champ électrique d'atomes à un électron ; le Chapitre II décrit les expériences réalisées et donne les justifications du choix de l'ytterbium ; le Chapitre III expose les résultats obtenus, en premier lieu sur la modulation des sections efficaces de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, mais aussi sur de nombreux traits particuliers des spectres, qui caractérisent plus spécialement l'atome d'ytterbium.

I. DESCRIPTIONS THEORIQUES.

Dans ce chapitre nous résumons différents modèles théoriques de la structure d'un atome en présence d'un champ électrique permanent. Le cas des atomes à plusieurs électrons ne peut être traité directement et tous ces modèles traitent principalement de l'atome d'hydrogène, dont la structure en champ électrique fait l'objet de calculs perturbatifs, WKB et numériques exacts, exposés au paragraphe I.2.

Les derniers permettent d'obtenir les fonctions d'onde à toute valeur de l'énergie de l'atome et de prévoir les variations en fonction de l'énergie des sections efficaces de photoionisation en présence d'un champ électrique (paragraphe I.3). Les résultats des calculs sur l'atome d'hydrogène peuvent être adaptés à l'étude des alcalins ; ils permettent encore de prévoir et d'expliquer de nombreuses caractéristiques des spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique de l'atome d'ytterbium.

I.1 Unités.

Nous utilisons de préférence aux unités du Système International, les unités atomiques introduites par Hartree, leur utilisation permet "à la fois d'éliminer des équations diverses constantes universelles et d'éviter les puissances de dix élevées dans les applications numériques" [17].

Les unités atomiques fondamentales sont :

- l'unité de longueur, rayon de la première orbite de Bohr de l'atome d'hydrogène à noyau fixe,
- l'unité de masse, masse de l'électron,
- l'unité de charge électrique, valeur absolue de la charge de l'électron.

Unités dérivées :

- l'unité de champ électrique, champ créé par la charge unité à la distance unité. C'est le champ créé par le proton sur la première orbite de Bohr de l'atome d'hydrogène à noyau fixe, qui vaut $5,14225(3)\ 10^{11}\ Vm^{-1}$,
- l'unité d'énergie, énergie potentielle électrostatique de deux charges unités séparées par la distance unité. C'est deux fois le potentiel d'ionisation de l'atome d'hydrogène à noyau fixe.

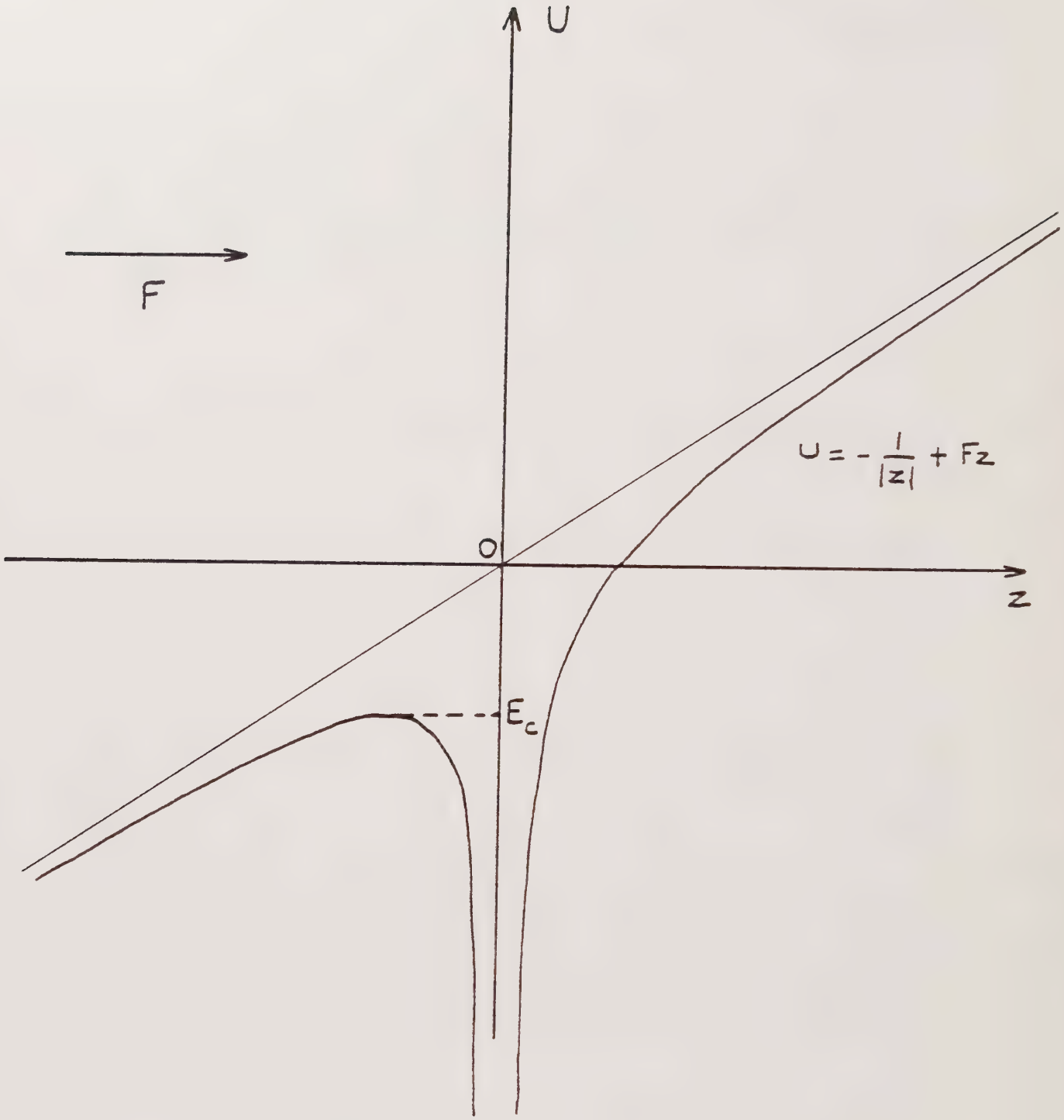


Figure I-1

Energie potentielle suivant l'axe Oz , axe du champ électrique.

I.2 La structure de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électrique.

I.2.1 Potentiels.

En l'absence de perturbation, l'énergie potentielle U_0 d'un électron dans le potentiel coulombien d'un noyau de charge +1 s'écrit :

$$U_0 = -\frac{1}{r} \quad .$$

En présence d'un champ électrique uniforme F dans la direction Oz , cette énergie potentielle devient

$$U = -\frac{1}{r} + Fz \quad .$$

U en fonction de z le long de l'axe Oz est représentée à la Figure I-1. On constate qu'en toute rigueur il n'y a plus, en présence du champ, d'états liés de l'atome. Toutefois, en-dessous de l'énergie critique (ou "seuil classique") $E_c = -2\sqrt{F}$, la probabilité qu'un électron situé près du noyau s'échappe par effet tunnel décroît très rapidement. La valeur de E_c pour différentes valeurs expérimentales de F est donnée dans le Tableau I-a :

F ($kVcm^{-1}$)	E_c (cm^{-1})
1	-194
1,5	-237
2	-274
3	-335
4	-387
5	-433
6	-474
7	-512
8	-547
9	-581
10	-612

Tableau I-a

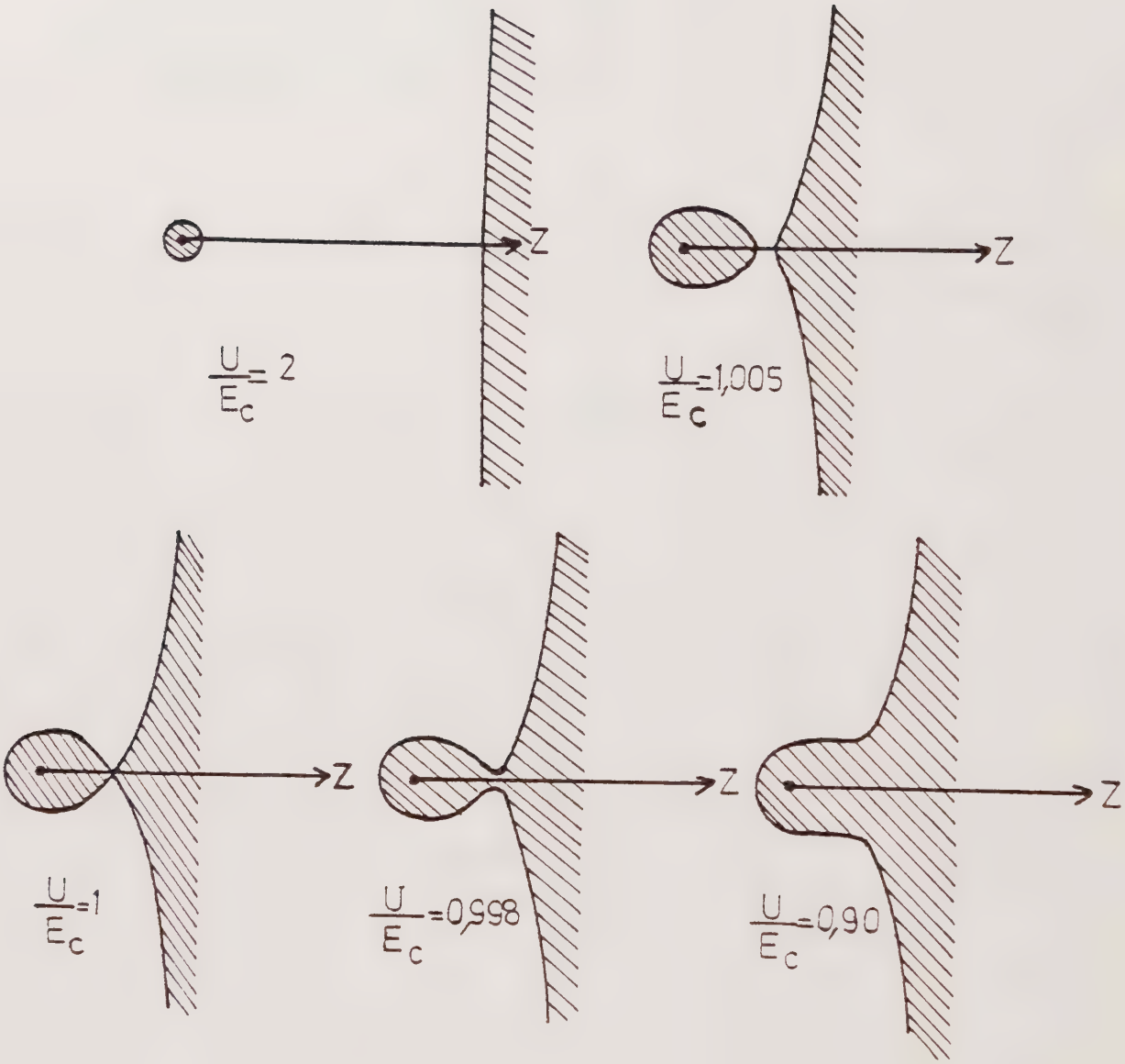


Figure I-1

Méridiennes des surfaces équipotentielles. La surface d'énergie potentielle égale à l'énergie totale E limite le domaine d'énergie cinétique positive où le mouvement de l'électron est classiquement possible (zone hachurée dans chaque cas).

En-dessous de ce seuil subsistent donc des états quasi liés, d'autant moins perturbés par le champ électrique que leur énergie est plus basse.

Inversement, un état d'énergie E donnée est ionisé si E est supérieure à l'énergie critique E_c, c'est-à-dire si le champ électrique permanent appliqué est supérieur au champ critique $F_c = \frac{E^2}{4}$. Le tracé des surfaces équipotentielles (Figure I-2 d'après Jacquinot et al. [18]) montre cependant qu'il peut exister des trajectoires classiques fermées à des énergies supérieures à l'énergie critique E_c. En particulier, dans un mouvement circulaire autour du noyau dans un plan de z constant, l'électron ne s'approche jamais du goulot qui peut être ouvert dans la surface de potentiel $U = E$ par le champ électrique, et reste lié.

Il est clair que l'aptitude de l'électron à s'échapper dans la direction du champ est liée à son moment cinétique orbital dans cette direction. L'exemple précédent montre qu'un grand moment cinétique suivant Oz retient l'électron au voisinage du noyau.

On peut évaluer quantitativement le champ critique $F_c^{m_\ell}$ d'ionisation d'un état de nombre quantique magnétique orbital m_ℓ en ajoutant à l'énergie potentielle U le terme d'énergie cinétique $\frac{m_\ell^2}{2\rho^2}$ $(\rho^2 = x^2+y^2)$ dû à la composante de la vitesse orthogonale à la direction du champ, inutile pour l'ionisation [19]. Ce terme centrifuge, si m_ℓ n'est pas nul, déplace le minimum de potentiel du point $z = -\frac{1}{\sqrt{F}}$ de l'axe Oz à un cercle d'axe Oz. Les valeurs calculées de $F_c^{m_\ell}$, fonction croissante de m_ℓ, s'accordent bien en première approximation aux valeurs expérimentales [12].

I.2.2 Traitement quantique.

a) Symétries conservées dans l'effet Stark.

En présence d'un champ électrique, l'atome d'hydrogène n'est plus un système invariant par rotation autour d'un axe quelconque, le carré du moment cinétique ne commute plus avec le hamiltonien H .

Le champ électrique conserve cependant l'invariance par rotation autour de l'axe Oz , la composante L_z du moment cinétique sur cet axe (adopté dorénavant comme axe de quantification) commute avec H et le nombre quantique magnétique m reste un bon nombre quantique ($m = m_L$: nous négligeons tout effet relativiste et ne considérons que le moment cinétique orbital).

De plus, H est invariant dans une symétrie par rapport à un plan contenant Oz , on en déduit qu'à chaque état de m non nul correspond un état de m opposé, de même énergie. Le champ électrique ne lève pas la dégénérescence de $+m$ et de $-m$.

En champ extérieur nul dans un potentiel coulombien existe une autre constante du mouvement que le moment cinétique : le vecteur de Runge-Lenz $\vec{M} = \vec{p} \wedge \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r}$. En présence d'un champ électrique, la composante suivant Oz du vecteur de Runge-Lenz généralisé $\vec{M} = \vec{p} \wedge \vec{L} - \frac{\vec{r}}{r} + \frac{1}{2} (\vec{r} \wedge \vec{F}) \wedge \vec{r}$ commute encore avec le hamiltonien [20] Les opérateurs H , L_z , M_z forment un ensemble complet d'observables qui commutent pour le problème étudié.

b) Equations du mouvement.

En présence d'un champ électrique, l'équation de Schrödinger de l'atome d'hydrogène n'est plus séparable en coordonnées sphériques ; en revanche, et cela est lié à la symétrie particulière du potentiel coulombien qui provoque la conservation de M_z , elle l'est encore en coordonnées paraboliques [21].

Les coordonnées paraboliques ξ , η , φ sont définies par

$$\xi = r + z \qquad (\xi \text{ et } \eta \text{ sont positifs})$$

$$\eta = r - z$$

$$\varphi = \operatorname{arctg} \frac{y}{x} \qquad \text{(comme en coordonnées sphériques)} .$$

L'équation de Schrödinger, pour une fonction d'onde de la forme $\Psi = (\xi\eta)^{-\frac{1}{2}} \chi_1(\xi)\, \chi_2(\eta)\, \frac{e^{im\varphi}}{\sqrt{2\pi}}$ équivaut au système

$$\frac{d^2\chi_1}{d\xi^2} - \left(\frac{m^2-1}{4\xi^2} - \frac{Z_1}{\xi} - \frac{E}{2} + \frac{F}{4}\xi \right) \chi_1 = 0$$

$$\frac{d^2\chi_2}{d\eta^2} - \left(\frac{m^2-1}{4\eta^2} - \frac{Z_2}{\eta} - \frac{E}{2} - \frac{F}{4}\eta \right) \chi_2 = 0$$

dans lequel les paramètres de séparation Z_1 et Z_2 sont réels et liés par l'égalité

$$Z_1 + Z_2 = 1 \qquad \text{(charge du noyau)}.$$

On peut définir des énergies cinétiques effectives T_ξ et T_η telles que les équations précédentes s'écrivent

$$\frac{1}{2}\frac{d^2\chi_1}{d\xi^2} + T_\xi \chi_1 = 0$$

$$\frac{1}{2}\frac{d^2\chi_2}{d\eta^2} + T_\eta \chi_2 = 0$$

leur expression est

$$T_\xi = \frac{E}{4} - \frac{m^2-1}{8\xi^2} + \frac{Z_1}{2\xi} - \frac{F\xi}{8}$$

$$T_\eta = \frac{E}{4} - \frac{m^2-1}{8\eta^2} + \frac{Z_2}{2\eta} + \frac{F\eta}{8} \quad .$$

En champ nul T_ξ et T_η s'expriment de la même façon en fonction de ξ et η respectivement (avec les paramètres Z_1 et Z_2 respectivement), mais en présence d'un champ électrique $F \neq 0$ le terme supplémentaire proportionnel à F est positif dans T_η et négatif dans T_ξ. Lorsque la variable tend vers l'infini, T_ξ tend vers $-\infty$ alors que T_η tend vers $+\infty$; en conséquence, en présence d'un champ électrique, le mouvement suivant ξ est borné alors que le mouvement suivant η ne l'est pas. Le spectre de l'équation en χ_1 est un spectre discret alors que le spectre de l'équation en χ_2 est a priori un spectre continu.

Ces propriétés indiquent la marche à suivre pour résoudre l'équation de Schrödinger en coordonnées paraboliques.

Ayant choisi m, qui n'intervient dans les équations en χ_1 et χ_2 que par son carré en accord avec la dégénérescence de $+m$ et $-m$, comme le spectre de l'atome d'hydrogène en champ électrique est un spectre continu, on peut choisir une énergie E. On résout alors l'équation en χ_1 en considérant Z_1 comme la valeur propre du mouvement lié en ξ ; les valeurs discrètes prises par Z_2 se déduisent des valeurs discrètes de Z_1 par l'égalité $Z_2 = 1 - Z_1$. On résout l'équation différentielle en χ_2 avec ces valeurs de Z_2 et on obtient une fonction d'onde entièrement déterminée en ξ et η à l'énergie E.

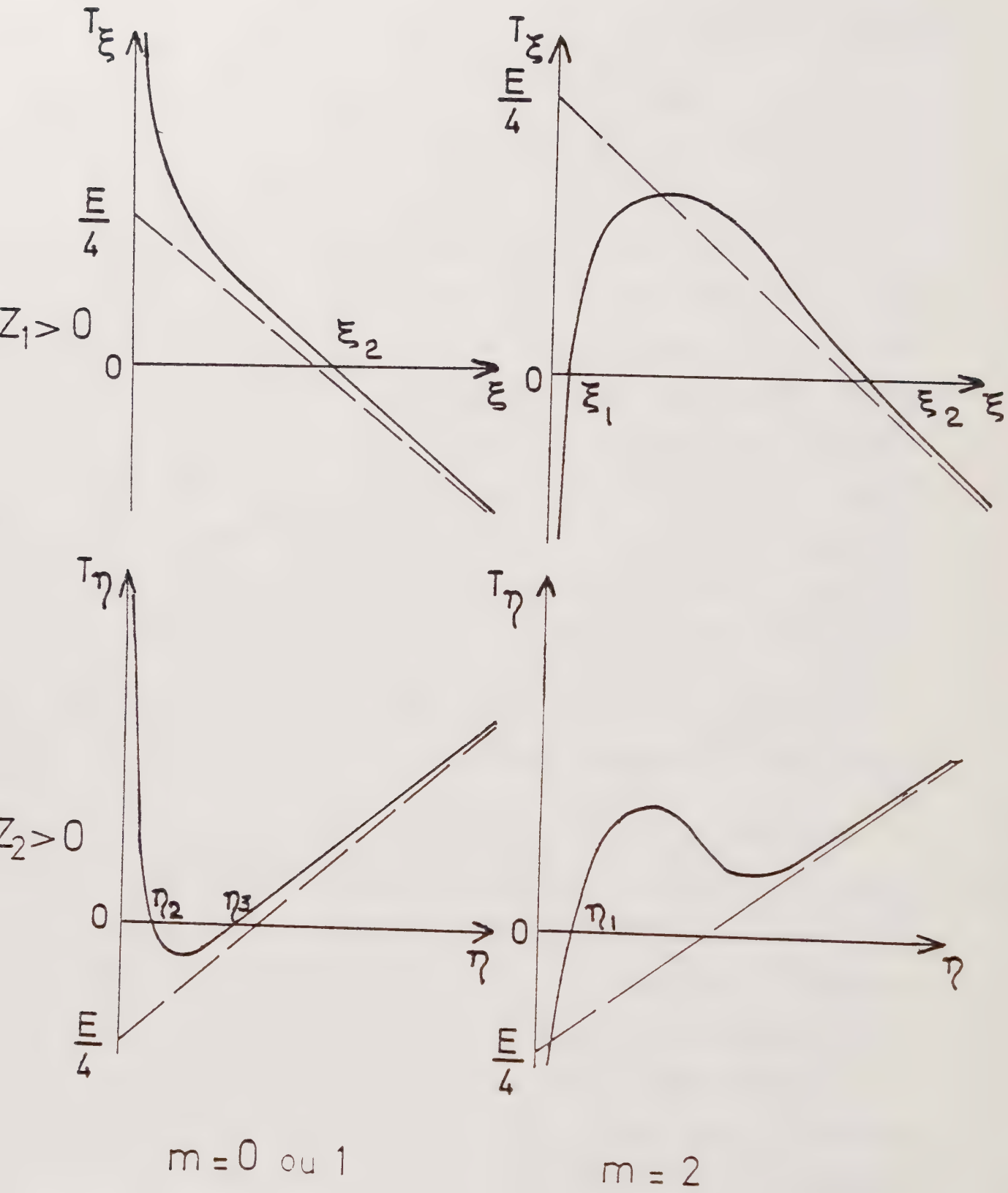


Figure I-3 : Energies cinétiques effectives en coordonnées paraboliques.

On montre qu'elle est fonction propre de l'opérateur M_z avec la valeur propre $Z_2 - Z_1$ [20].

La Figure I-3 donne l'allure des courbes d'énergies cinétiques effectives en fonction de la position pour différentes valeurs de $|m|$. Sur ces courbes on vérifie que le mouvement en ξ est toujours limité par une valeur maximale ξ_2, et que l'ionisation (classiquement) ne peut avoir lieu que dans la direction des valeurs élevées de η. On remarque aussi que pour les valeurs de $|m|$ supérieures à 2 le mouvement est limité par des valeurs minimales ξ_1 et η_1 des coordonnées paraboliques, cette limitation est introduite par les termes centrifuges $-\frac{m^2-1}{8\xi^2}$ et $-\frac{m^2-1}{8\eta^2}$, analogues du terme $-\frac{m^2}{2\rho^2}$ du modèle cylindrique.

c) Traitement perturbatif.

En champ électrique nul les équations en χ_1 et χ_2 sont analytiquement solubles [21] et on trouve pour les états liés de l'atome d'hydrogène que les paramètres de séparation Z_1 et Z_2 sont de la forme

$$Z_1 = \frac{1}{n}\left(n_1 + \frac{1}{2}(|m| + 1)\right)$$

$$Z_2 = \frac{1}{n}\left(n_2 + \frac{1}{2}(|m| + 1)\right)$$

où n est le nombre quantique principal et n_1 et n_2 des entiers naturels.

Par addition $(Z_1 + Z_2 = 1)$ on obtient la relation liant n_1 et n_2 :

$$n = n_1 + n_2 + |m| + 1 \quad ,$$

n_1 appartient donc à l'intervalle $[0 , n-|m|-1]$ et à n et m fixés peut prendre $n-|m|$ valeurs, comme ℓ . Les états propres ne différant que par la valeur du nombre quantique parabolique n_1 (comme les états propres ne diffèrant que par la valeur de ℓ) sont dégénérés.

En champ électrique faible, on peut faire un calcul perturbatif de l'effet Stark en fonction des nombres quantiques n , n_1 , m [21] qui consiste à calculer aux ordres successifs de perturbation par le champ F les paramètres Z_1 et Z_2 considérés comme valeurs propres des équations séparées en ξ et η , en fonction de l'énergie. A chaque ordre la relation $Z_1 + Z_2 = 1$ permet de calculer le développement perturbatif de l'énergie elle-même.

La série obtenue ne converge pas, mais on peut déterminer l'ordre optimal du développement perturbatif, et le champ à ne pas dépasser, pour obtenir l'énergie perturbée avec une précision choisie [22].

Pour l'interprétation d'une partie des résultats expérimentaux, nous nous sommes contentés du développement de l'énergie au quatrième ordre de perturbation en F , donné par la formule [23]

$$E = E_0 + E_1 + E_2 + E_3 + E_4 \quad \text{avec}$$

$$E_0 = -\frac{1}{2n^2}$$

$$E_1 = \frac{3}{2} n(n_1 - n_2) F$$

$$E_2 = -\frac{1}{16} n^4 [17n^2 - 3(n_1-n_2)^2 - 9m^2 + 19] F^2$$

$$E_3 = \frac{3}{32} n^7(n_1 - n_2) [23n^2 - (n_1-n_2)^2 + 11m^2 + 39] F^3$$

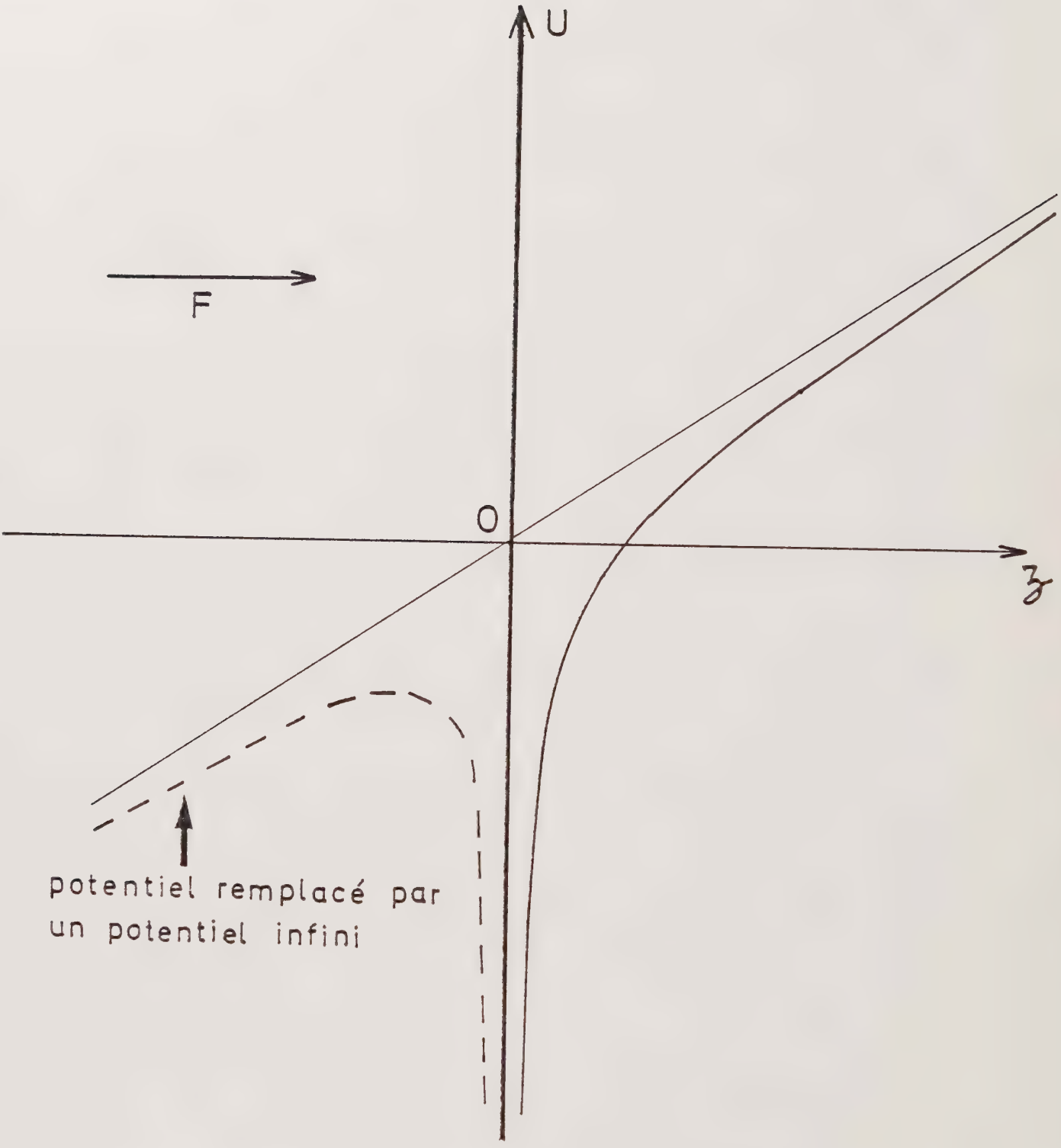


Figure I-1 : Potentiel unidimensionnel donnant par un calcul WKB une estimation correcte de la période de modulation de la section efficace de photoionisation au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul (E = 0) [11].

$$E_4 = -\frac{1}{1024} n^{10} [5487n^4 + 35182n^2 - 1134m^2(n_1-n_2)^2 + 1806n^2(n_1-n_2)^2 - 3402n^2m^2 - 549m^4 + 5754(n_1-n_2)^2 - 8622m^2 + 16211] F^4 .$$

A nombre quantique principal donné, E est fonction croissante de n_1 ; au sous-niveau Stark d'énergie maximale correspond la valeur de n_1 la plus élevée.

d) Traitements non perturbatifs.

Lorsqu'on fait croître F , ou qu'on s'approche de la limite d'ionisation $E = 0$, les développements perturbatifs ne fournissent plus de résultats précis. On peut alors appliquer la méthode WKB de différentes façons :

- Potentiel unidimensionnel. Pour estimer théoriquement la période des modulations observées dans la section efficace de photoionisation π du rubidium en présence d'un champ électrique au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, Freeman et al. [14] ont fait un calcul WKB en utilisant le potentiel unidimensionnel de la Figure I-4, égal au potentiel réel à $z > 0$ et infini pour $z \leqslant 0$. La règle de quantification de Bohr-Sommerfeld dans le puits de potentiel donne l'intervalle $\frac{dE}{dn}$ entre résonances qui, au voisinage de l'énergie nulle, est proportionnel à $F^{3/4}$.

La période de modulation mesurée [14] pour différentes valeurs de F coïncide, à l'incertitude expérimentale près, avec les valeurs calculées de $\frac{dE}{dn}$. Cet accord, surprenant eu égard à la rudesse de la

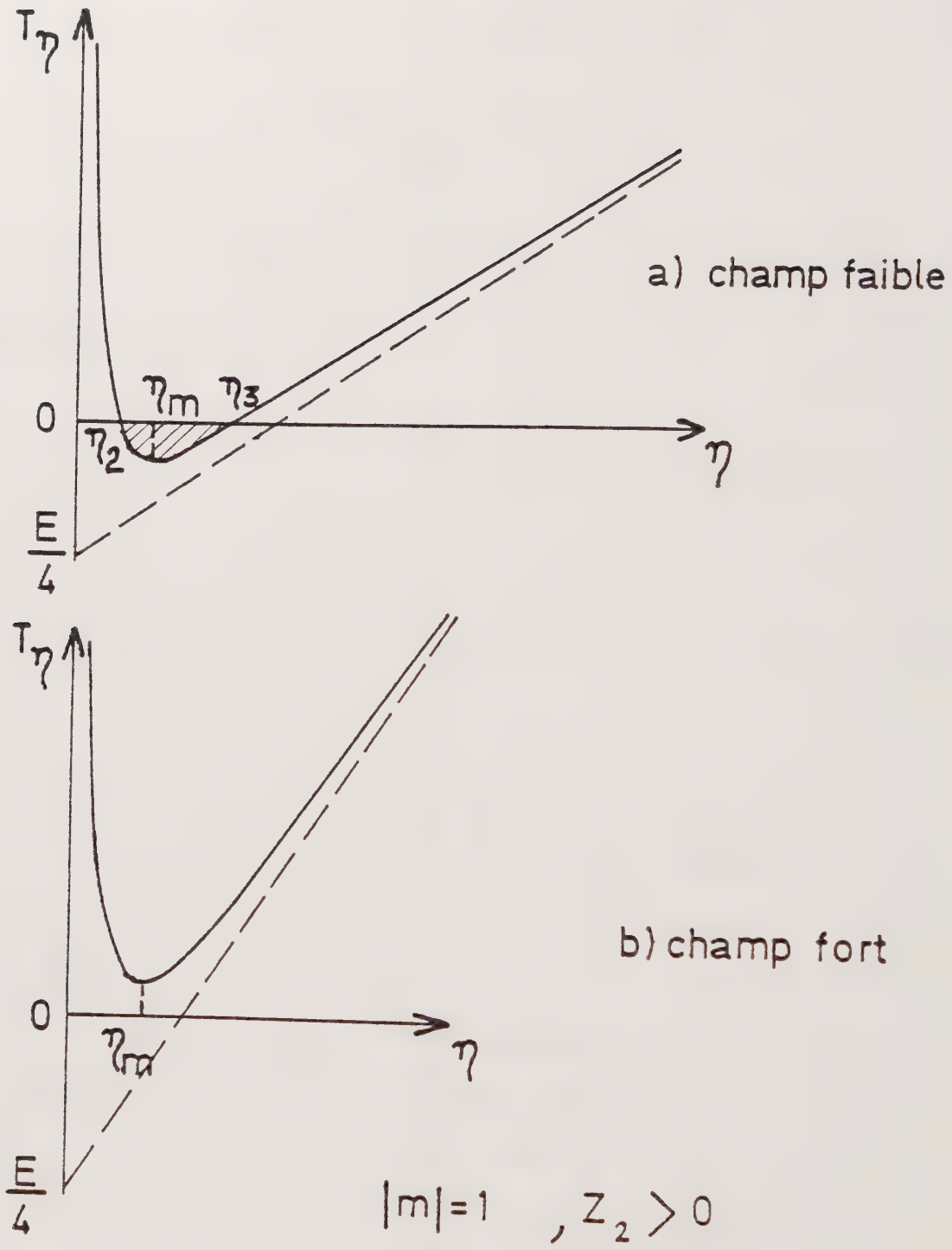


Figure I-5

Energie cinétique effective pour la coordonnée η au-dessous (a) et au-dessus (b) du seuil d'ionisation parabolique.

simplification apportée au potentiel, s'explique par la structure intime des modulations au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. Nous y reviendrons plus bas.

- Potentiel parabolique. On peut traiter par la méthode WKB les équations du mouvement en coordonnées paraboliques [21,24,25] , le mouvement en ξ a lieu dans un puits de potentiel et on peut appliquer la règle de quantification de Bohr-Sommerfeld, qui s'écrit

$$\int_{\xi_1}^{\xi_2} \sqrt{2T_\xi}\, d\xi = (n_1 + \frac{1}{2})\, \pi$$

où n_1 est un entier naturel. Elle fournit Z_1 en fonction de l'énergie et de n_1 . n_1 est le nombre de noeuds de la fonction $\chi_1(\xi)$ dans l'intervalle $]\xi_1,\xi_2[$ et ainsi défini coïncide avec le nombre quantique n_1 qui apparaît en champ nul [20].

Le mouvement en η n'est pas contenu par un puits de potentiel fini ; l'énergie cinétique T_η présente un minimum local en η_m qui peut être négatif ou positif comme le montre la Figure I-5 (dans le cas où $|m| = 1$).

Dans le premier cas (a), il existe une barrière de potentiel entre η_2 et η_3 (hachurée), le mouvement en η est classiquement lié dans la zone $[\eta_1,\eta_2]$, l'ionisation a lieu par effet tunnel. On définit η_2 comme le nombre de noeuds de la fonction χ_2 dans l'intervalle $]\eta_1,\eta_2[$, et on en tire une définition du nombre quantique principal valable en champ électrique non nul, par l'égalité $n = n_1 + n_2 + |m| + 1$.

Dans le second cas (b), le mouvement en η est libre. La barrière de potentiel disparaît lorsque le minimum de T_η s'annule, c'est ainsi qu'apparaît un seuil d'ionisation en coordonnées paraboliques ; on obtient facilement la relation liant le champ électrique à l'énergie et au paramètre Z_2, au seuil d'ionisation :

$$F_c^p = \frac{E^2}{4Z_2}\left[\frac{4+8\sqrt{1+\frac{3}{8}\frac{m^2-1}{Z_2^2}E}}{3\left(1+\sqrt{1+\frac{3}{8}\frac{m^2-1}{Z_2^2}E}\right)^2}\right] \qquad [26]$$

en particulier, si $|m| = 1$:

$$F_c^p = \frac{E^2}{4Z_2} \qquad \text{(formules valables à } E < 0\text{).}$$

Mais ces formules sont implicites et ne donnent pas directement le seuil d'ionisation d'un niveau de n_1 et n_2 fixés, car l'énergie E et le paramètre Z_2 y sont eux-mêmes fonctions de F.

Cependant il est connu [1] que pour les états très excités de petit n_2, Z_2 prend des valeurs très faibles (de l'ordre de $\frac{1}{n}$: en champ nul $Z_2 = \frac{1}{n}\left[n_2 + \frac{1}{2}(|m|+1)\right]$), le champ classique d'ionisation des sous-niveaux de n_1 les plus grands peut de ce fait être beaucoup plus élevé que le champ critique $F_c = \frac{E^2}{4}$ (implicite aussi, car E est fonction du champ électrique).

En revanche, pour les niveaux de petit n_1, auxquels correspondent des valeurs de Z_2 proches de 1, le seuil d'ionisation est peu différent du seuil critique donné par la formule ci-dessus.

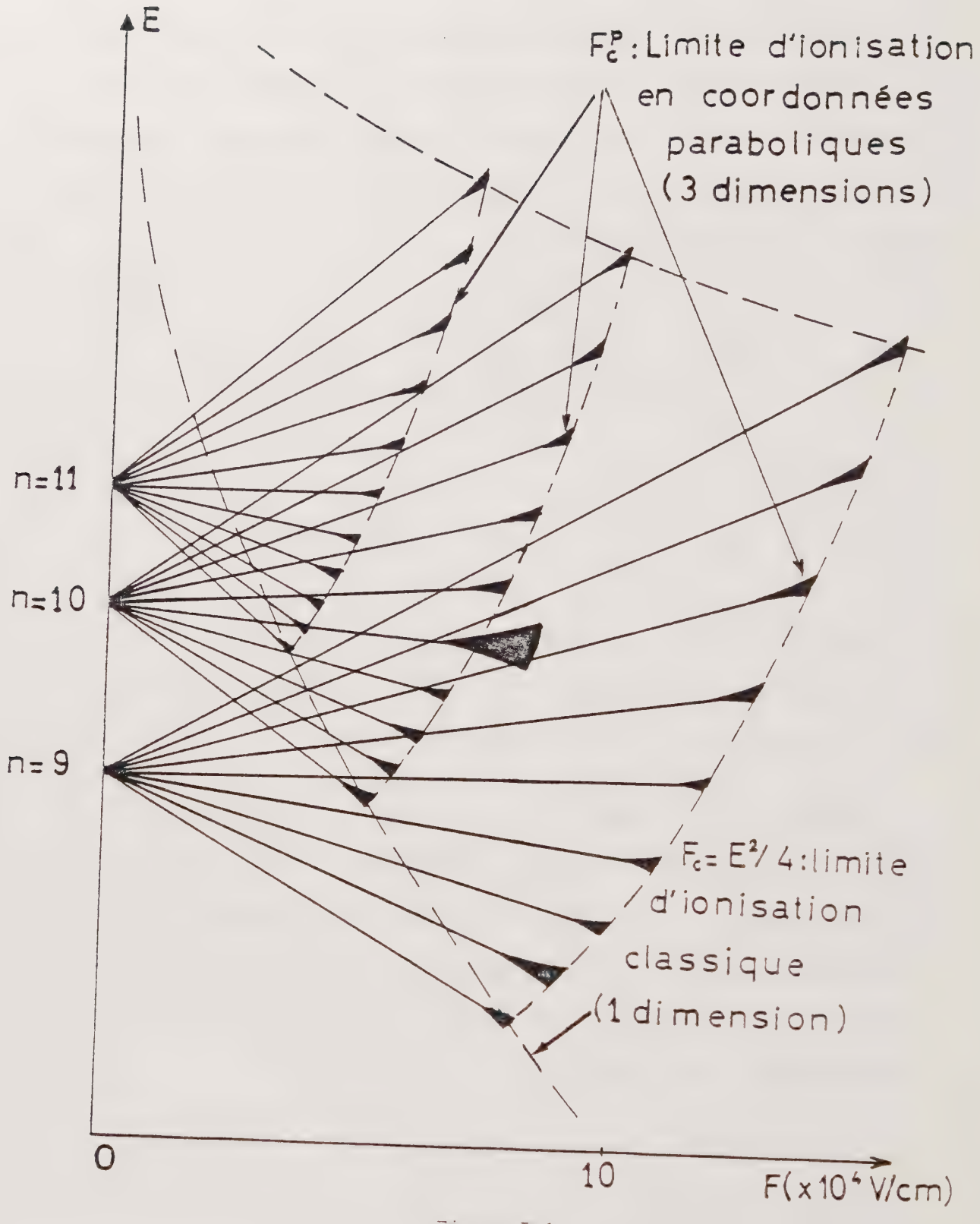


Figure I-4

Structure Stark des multiplicités n = 9, 10 et 11 de l'atome d'hydrogène, pour m = 0. L'effet tunnel élargit les niveaux avant que le champ électrique atteigne le seuil d'ionisation F_c^p.

Ces différences de seuils d'ionisation entre sous-niveaux de n_1 différents sont beaucoup plus importantes que les différences de seuils d'ionisation dues à des variations de $|m|$. L'allure du spectre Stark de l'hydrogène est donnée par la Figure I-6 ; paradoxalement, parmi les $n - |m|$ sous-niveaux issus d'un même niveau de l'atome en champ nul, ce sont ceux dont l'effet Stark déplace l'énergie vers le bas qui s'ionisent les premiers lorsque le champ croît : c'est qu'un déplacement d'énergie "vers le bas" ne correspond plus forcément à l'augmentation de l'énergie de liaison, qui n'est plus définie en présence d'un champ électrique. La distribution spatiale des fonctions d'onde paraboliques explique mieux ce comportement : dans les états où $n_1 > n_2$ l'électron a une plus grande probabilité de se trouver du côté de $z > 0$, c'est le côté où l'énergie potentielle électrostatique due au champ F est la plus élevée ; dans les états où $n_1 < n_2$, l'électron se trouve plutôt du côté de $z < 0$, avec une énergie totale plus faible mais plus près, dans l'espace, du seuil d'ionisation.

La séparation du mouvement en coordonnées paraboliques permet aussi des calculs approchés de la structure de l'atome au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul ; l'application de la règle de quantification de Bohr-Sommerfeld au potentiel en ξ , en choisissant Z_1 égal à 1, donne une bonne prévision théorique de la période de modulation :

$$\frac{dE}{dn} = (22{,}53\ \text{cm}^{-1})\ (F\ /\ 4335\ \text{Vcm}^{-1})^{3/4} \qquad [27] \ .$$

Le choix simplificateur de $Z_1 = 1$ est justifié parce que la modulation observée au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul est bien due aux états caractérisés par une valeur du paramètre de séparation Z_1

proche de 1 ; la concentration de la distribution spatiale des fonctions d'onde correspondantes du côté de $z > 0$ explique aussi les bons résultats donnés par le potentiel unidimensionnel [14] dans le cas où $m = 0$, c'est-à-dire lorsque le mouvement classique de l'électron est restreint à un plan parallèle à Oz .

Des trajectoires de ce mouvement classique ont été calculées numériquement à des énergies supérieures à la limite d'ionisation en champ nul [14] et analytiquement [24] . Sur ces trajectoires, l'électron oscille plusieurs fois le long de l'axe Oz du côté de $z > 0$ (cathode) avant de s'échapper du côté opposé. On retrouve dans ce mouvement, traduite classiquement, la principale caractéristique des états quantiques responsables de la modulation à énergies positives : l'oscillation du côté de $z > 0$ du noyau avant l'ionisation correspond à une probabilité de présence quantique importante dans cette région et à une valeur de Z_1 proche de 1 .

Quant à l'absence apparente de structure dans le continuum de photoionisation en $m \neq 0$ à énergies positives [14] , on la justifie parce qu'un électron de moment cinétique non nul par rapport à Oz ne peut pas osciller le long de cet axe et que l'ionisation n'est jamais retardée.

e) Calcul exact.

C'est un calcul numérique [28] qui a permis de déterminer la structure du continuum d'ionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul ; son principe est celui qui a été décrit au b). Les

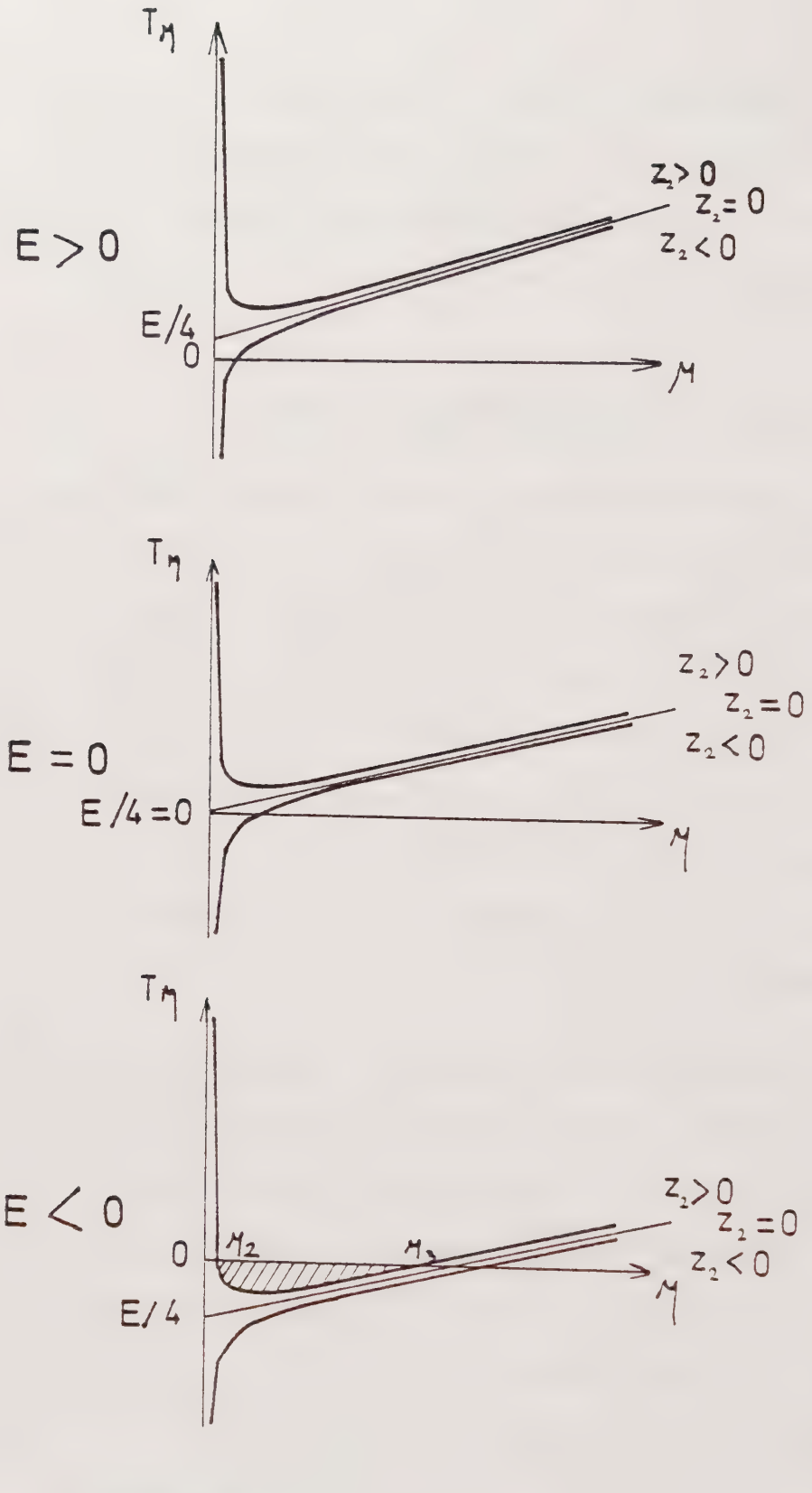
fonctions d'onde normalisées en énergie ont été obtenues et les sections efficaces de photoionisation à partir de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène en ont été déduites ; nous exposerons le résultat de ces prévisions au paragraphe I.3.

I.2.3 Du rôle de la limite d'ionisation en champ nul.

En présence d'un champ électrique uniforme il semble a priori que l'énergie de la limite d'ionisation en champ nul ne doive plus être considérée comme une énergie particulière. En effet, l'énergie privilégiée que fait apparaître le tracé du potentiel auquel est soumis l'électron dans la direction du champ (Figure I-1) est l'énergie critique $E_c = -2\sqrt{F}$, au-dessus de laquelle l'ionisation devient classiquement possible. Ainsi peut-on préjuger qu'aucune différence qualitative ne distingue les spectres de photoionisation à énergies supérieures et inférieures à zéro.

Pourtant l'expérience montre, comme nous le verrons au Chapitre III, que les spectres de photoionisation changent relativement vite d'aspect au voisinage de 0 (par "vite" nous entendons : dans un intervalle d'énergie petit par rapport à $|E_c|$). C'est qu'en fait l'énergie de la limite d'ionisation en champ nul conserve une importance certaine, que les discussions des calculs théoriques mettent en valeur ; sans entrer dans leurs détails, donnons-en deux illustrations.

La première concerne l'énergie cinétique de l'électron émis lors de l'ionisation. En champ nul cette énergie est simplement égale à E ,



$|m| = 1$

Figure I-7

Energie cinétique effective pour la coordonnée ρ pour différentes valeurs de l'énergie totale E. A $E > 0$ il ne peut plus exister de barrière de potentiel entre deux domaines d'énergie cinétique positive ; il n'y a plus d'états liés.

E étant l'énergie à laquelle l'atome a été porté au-dessus de la limite d'ionisation. En présence d'un champ électrique, l'énergie cinétique de l'électron est exactement $E - (-\frac{1}{r} + Fz)$. Lors de l'ionisation, l'électron échappe à l'attraction coulombienne du noyau et le terme $\frac{1}{r}$ peut être négligé ; il reste que l'électron libéré emporte l'énergie cinétique (croissante au cours du temps) $E - Fz$. $-Fz$ est le travail -positif- fourni à l'électron depuis qu'il a quitté le noyau par le champ électrique permanent. On constate que la différence entre l'énergie cinétique de l'électron émis et le travail fourni par le champ extérieur est toujours égale à E .

Dans ce bilan énergétique classique, où l'on suppose que l'électron est localisé avant l'ionisation au noyau, c'est bien à zéro, énergie de la limite d'ionisation en champ nul, qu'il faut rapporter l'énergie d'excitation, et non à l'énergie critique E_c .

La deuxième illustration est donnée par les courbes d'énergie cinétique T_η , qui déterminent le caractère lié ou libre du mouvement. Pour la simplicité du tracé nous choisissons le cas où $|m| = 1$, les cas $m = 0$ ou $|m| \geqslant 2$ s'en déduisent en ajoutant à T_η un terme respectivement attractif ou répulsif à courte distance du noyau (au voisinage de $\eta = 0$).

La Figure I-7 donne l'allure de T_η pour différentes valeurs de Z_2 et de l'énergie - le paramètre Z_2 est réel, mais pas nécessairement positif. Quand Z_2 est positif, T_η présente un minimum en un point η_m , comme nous l'avons noté au paragraphe I.2.2.d) ; et si ce

minimum est négatif le mouvement en η peut être classiquement lié autour du noyau. Mais cette possibilité ne se présente pas à toutes les valeurs de l'énergie.

Si l'énergie E est positive, quelle que soit la valeur de Z_2 le mouvement en η est libre, il n'y a pas de barrière de potentiel. Si l'énergie E est strictement négative, il existe des valeurs de Z_2 pour lesquelles une barrière de potentiel apparaît, qui peut créer des états quasi-liés.

Ainsi, dans le traitement en coordonnées paraboliques on vérifie que l'énergie de la limite d'ionisation en champ nul, en présence d'un champ électrique, demeure l'énergie à partir de laquelle les états quasi-liés disparaissent. Cela explique le changement observé dans les spectres expérimentaux autour de 0.

Remarquons qu'en toute rigueur Z_2 , étant quantifié par la relation $Z_1 + Z_2 = 1$, ne peut pas être choisi arbitrairement, mais Z_2 prend tout de même des valeurs assez petites et l'énergie au-dessus de laquelle les états quasi-liés cessent d'exister n'est que légèrement inférieure à 0. La distribution des états quasi-liés dans le plan (E , Z_2) en présence d'un champ électrique est remarquablement résumée par la Figure 5(b) de la référence [25].

I.3 Prévisions théoriques pour la section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique.

1.3.1 A partir de l'état fondamental de l'hydrogène (ou d'un état s).

On considère que le niveau fondamental de l'hydrogène, ou plus généralement le niveau profond s à partir duquel est réalisée la photoionisation n'est pas perturbé par le champ électrique et reste un niveau discret. Dans l'approximation dipolaire électrique, la photoionisation rentre dans le cadre des transitions d'un niveau discret vers un continuum sous l'effet d'une perturbation sinusoïdale.

On note φ_i la fonction d'onde du niveau de départ, $\Psi^F_{n_1, m}(E)$ les fonctions d'onde des états finals du continuum normalisées en énergie, c'est-à-dire de sorte que $\langle \Psi^F_{n_1', m'}(E') | \Psi^F_{n_1, m}(E) \rangle = \delta_{n_1 n_1'} \delta_{mm'} \delta(E-E')$, $\hat{e}$ le vecteur polarisation de la lumière, tel que

$\vec{r}\cdot\hat{e} = z$ en polarisation π et $\vec{r}\cdot\hat{e} = \frac{1}{\sqrt{2}}(x \pm iy)$ en polarisation $\sigma^{\pm}$.

La section efficace de photoionisation $\sigma^F(E)$, en présence du champ F , est la somme des sections efficaces partielles $\sigma^F_{n_1}(E)$ de photoionisation dans chacun des sous-espaces propres caractérisés par une valeur du nombre quantique n_1 , le nombre quantique magnétique m de l'état final est déterminé par la polarisation de la lumière excitatrice.

$\sigma_F(E)$ s'écrit (par application de la règle d'or de Fermi)

$$\sigma^F(E) = \sum_{n_1=0}^{\infty} \sigma^F_{n_1}(E) = 4\pi^2 \alpha \hbar\omega \sum_{n_1=0}^{\infty} |\langle \Psi^F_{n_1,m}(E) | \vec{r}\cdot\hat{e} | \varphi_i \rangle|^2 \quad [25]$$

α désignant la constante de structure fine et $\hbar\omega$ l'énergie du photon absorbé.

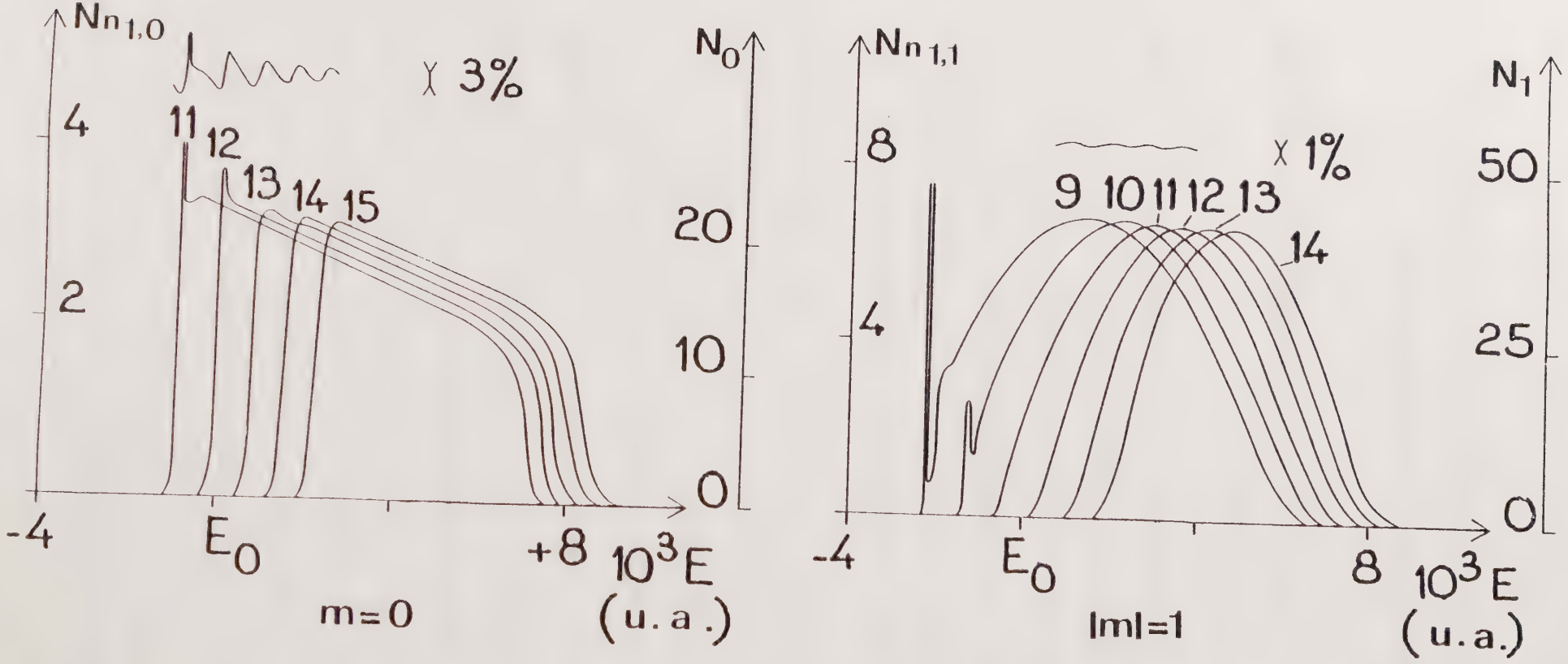


Figure I-3 : Résonances de densité partielle d'états pour des valeurs successives du nombre quantique parabolique n_1, et densité totale d'états (d'après [16]). $F = 1{,}5 \times 10^{-5}$ u.a. ou $F = 77\ kVcm^{-1}$.

La fonction d'onde φ_i de l'état initial est concentrée autour du noyau de sorte que l'ordre de grandeur de l'élément de matrice peut se déduire de la probabilité de présence $N^F_{n_1,m}(E)$ de l'électron à l'origine dans l'état final ; cette probabilité de présence n'est appréciable que lorsque les énergies cinétiques effectives $T_\xi(0)$ et $T_\eta(0)$ sont positives simultanément. Ces deux conditions fournissent respectivement pour un électron de n_1 et m donnés, une borne supérieure $E_d(n_1,m)$ et une borne inférieure $E_c(n_1,m)$ de l'énergie E, fonctions croissantes de n_1. $N^F_{n_1,m}(E)$, qui joue le rôle d'une densité partielle d'états, présente une résonance large entre E_c et E_d, à l'intérieur de laquelle, à énergies supérieures à E_0, le paramètre de séparation Z_1 varie de 1 à 0 lorsque E croît de E_c à E_d. Des exemples de cette résonance sont donnés par la Figure I-8 (d'après [16]).

La section efficace partielle $\sigma^F_{n_1}(E)$ ne sera importante qu'entre E_c et E_d, mais n'est pas simplement fonction linéaire de $N^F_{n_1,m}(E)$, car l'élément de matrice $\langle\Psi|\vec{r}\cdot\hat{e}|\varphi\rangle$ fait intervenir les propriétés de symétrie des fonctions d'onde et du vecteur de polarisation et peut s'annuler à des énergies où la densité partielle d'états est importante.

La fonction d'onde φ_i de l'état initial (état s) est symétrique par rapport au plan $z = 0$. En champ nul les fonctions d'onde paraboliques de nombres quantiques n_1 et n_2 égaux sont aussi symétriques par rapport à ce plan, et cette propriété est conservée en présence d'un champ électrique au voisinage de l'origine par les fonctions d'onde $\Psi^F_{n_1,m}(E)$ telles que $Z_1 = Z_2 = 0,5$, c'est-à-dire, à n_1 fixé, d'énergie voisine de la moyenne de E_c et E_d. A cette énergie, en

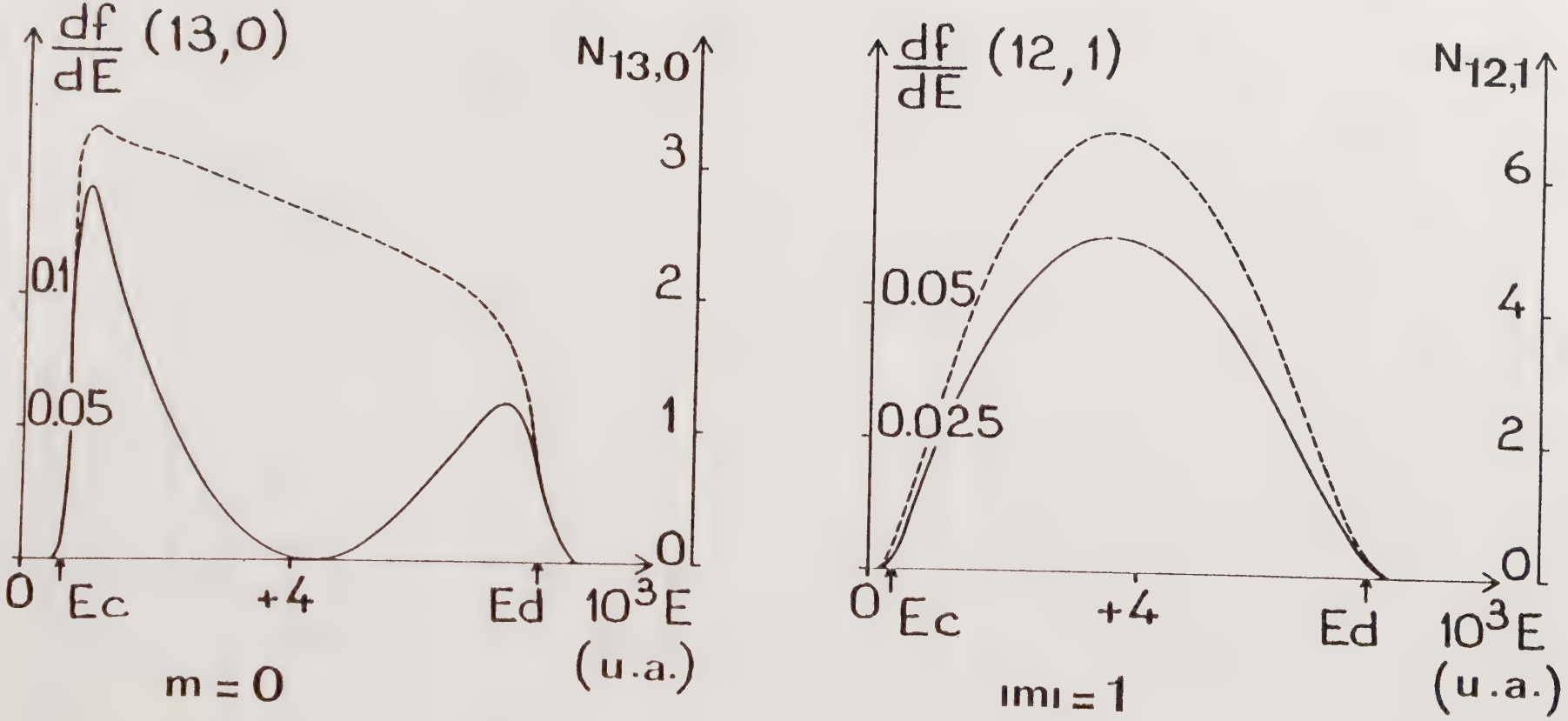


Figure I-9 : Répartition en énergie de la densité partielle d'états (------) et de la densité partielle de force d'oscillateur (——) (d'après [16]). $\mathcal{F} = 1{,}5 \cdot 10^{-5}$ u.a. ou $\mathcal{F} = 77$ kVcm^{-1}.

polarisation π (opérateur de transition antisymétrique par rapport au plan $z = 0$) la conjugaison de ces propriétés de symétrie provoque l'apparition d'un noeud de la section efficace de photoionisation, qu'illustre la Figure I-9 . (On donne, en ordonnée, une densité de force d'oscillateur $\frac{df}{dE}$, la section efficace s'en déduit simplement par la relation $\sigma = 6\pi^2 \alpha \frac{df}{dE}$ [25].

En polarisation σ (opérateur symétrique), il n'y a pas de tel effet destructif et la section efficace de photoionisation est pratiquement fonction linéaire de la densité partielle d'états.

C'est cette différence de comportement des sections efficaces partielles qui transparaît sur les sections efficaces totales, et la forte modulation observée dans le continuum $m = 0$ au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul peut être surtout attribuée à la formation d'un pic dans les sections efficaces partielles de photoionisation π par les effets de symétrie. On vérifie à la Figure I-10 que les maximums de la modulation, produits par ces pics, correspondent aux états d'arrivée d'énergie la plus basse à n_1 donné, c'est-à-dire de Z_1 proche de 1.

La profondeur de modulation décroît exponentiellement lorsqu'on s'élève en énergie au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul proportionnellement à $e^{-\frac{3E}{2\sqrt{F}}}$ [29] , et croît avec le champ électrique , c'est pourquoi on a intérêt à réaliser des expériences en champ électrique élevé.

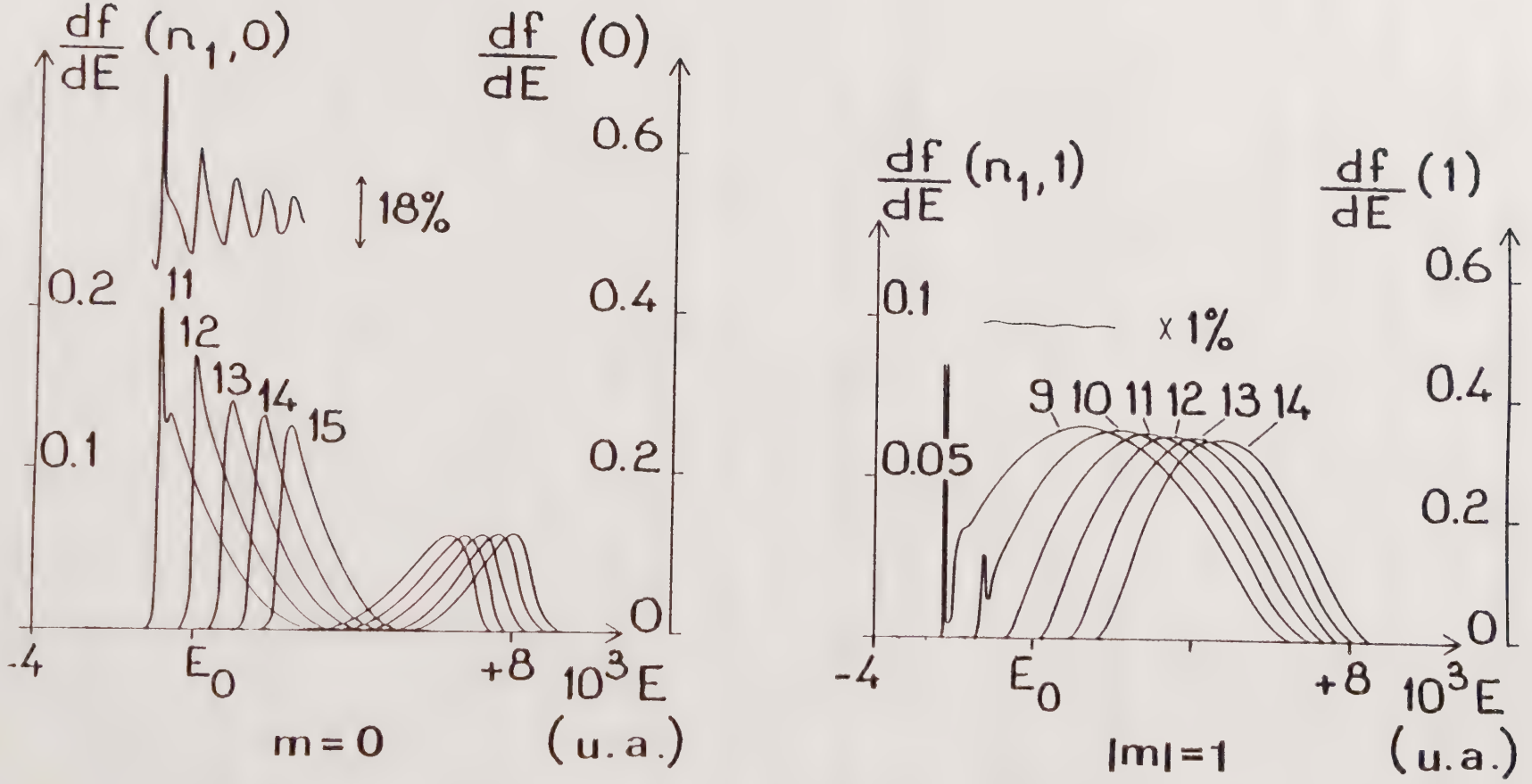


Figure I-10 : Répartition en énergie de la densité totale de force d'oscillateur (d'après [16]).
$F = 1{,}5 \cdot 10^{-5}$ u.a. ou $F = 77$ kVcm^{-1}.

Le résultat important de cette discussion est que l'existence de la modulation de la section efficace au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul n'est pas seulement liée à la structure du continuum d'arrivée (et à la forme des densités d'états partielles) mais aussi à la polarisation de la lumière excitatrice (et à la forme - modifiée par les effets de symétrie - des sections efficaces partielles de photoionisation).

Pour mettre ce dernier facteur en évidence, il faut atteindre les mêmes états du continuum dans des expériences différentes (avec les deux polarisations possibles) ce qui conduit naturellement à l'étude de la photoionisation en présence d'un champ électrique d'états hydrogénoïdes de moment orbital non nul.

I.3.2 A étages, dans l'hydrogène.

L'importance de la modulation de la section efficace totale de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul dépend toujours de la forme des sections efficaces partielles $\sigma^{F}_{n_1,m}(E)$: si elles présentent des pics aigus à certaines valeurs de l'énergie entre $E_c(n_1,m)$ et $E_d(n_1,m)$, autrement dit à certaines valeurs de Z_1, on observera une forte modulation de la section efficace totale. Cependant le niveau de départ n'étant plus de moment cinétique nul, les nœuds de $\sigma^{F}_{n_1,m}(E)$ peuvent être multiples, et les considérations de symétrie par rapport au plan de $z = 0$, qui ne s'appliquent qu'au point particulier où $Z_1 = Z_2 = 0,5$, ne suffisent plus à prévoir la forme des sections efficaces partielles et ne donnent pas à elles seules les règles de sélection pour l'apparition de la modulation. On peut seulement remarquer que la

forme des densités partielles d'états $N^{F}_{n_1,m}(E)$ dépend simplement du nombre quantique magnétique m de l'état final : l'effet centrifuge lié aux valeurs non nulles de m privilégie les états dont la fonction d'onde s'étale dans le plan $z = 0$ si bien que, pour $m \neq 0$, $N^{F}_{n_1,m}(E)$ aura toujours un maximum près du point milieu $Z_1 = Z_2 = 0,5$ et de faibles valeurs pour les valeurs extrêmes des paramètres de séparation.

Les densités partielles d'états $N^{F}_{n_1,0}(E)$ (états sans effet centrifuge) ont seules une forme plus carrée, avec un maximum proche de $Z_1 = 1$ (voir les figures précédentes) ; quelles que soient les positions des noeuds dans les sections efficaces partielles correspondantes, l'apparition d'un pic à énergie proche de E_c y est favorisée. La valeur $m = 0$ pour les états finals de photoionisation est donc a priori favorable à la modulation de la section efficace totale.

La décomposition des états finals sur la base des fonctions d'onde sphériques permet de calculer la section efficace totale de photoionisation à partir d'un état de moment cinétique ℓ sous la forme [29]

$$(K)\quad \sigma^{F}(E) = \sigma_{\ell+1,\ell+1}(E)\, H^{F}_{\ell+1,\ell+1}(E) + 2\sigma_{\ell+1,\ell-1}(E)\, H^{F}_{\ell+1,\ell-1}(E) + \sigma_{\ell-1,\ell-1}(E)\, H^{F}_{\ell-1,\ell-1}(E)$$

somme de deux termes correspondant à l'ionisation vers les deux états de moment cinétique permis par les règles de sélection ($\ell+1$ et $\ell-1$), et d'un terme d'interférence entre ces deux voies, qui tend vers zéro avec le champ électrique. Si $\ell = 0$, ou si la valeur de $|m|$ finale est supérieure à $\ell-1$, ne subsiste dans cette somme que le terme de photoionisation vers $\ell+1$.

$\sigma_{\ell+1,\ell+1}$ et $\sigma_{\ell-1,\ell-1}$ sont les sections efficaces de photoionisation en champ nul, $\sigma_{\ell+1,\ell-1}$ est une surface proportionnelle au produit des deux éléments de matrice dont les carrés respectifs donnent $\sigma_{\ell+1,\ell+1}$ et $\sigma_{\ell-1,\ell-1}$. Les $H^{F}_{\ell,\ell'}(E)$ sont des facteurs de modulation qui dépendent des coefficients géométriques de transformation entre fonctions d'onde paraboliques et sphériques, et du champ électrique par les facteurs de normalisation de ces fonctions d'onde ; ils contiennent toute la dépendance en champ électrique de la section efficace totale , ce sont leurs oscillations en phase qui produisent la modulation de cette section au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. Lorsque le champ électrique tend vers 0, la section efficace tend vers $\sigma_{\ell+1,\ell+1} + \sigma_{\ell-1,\ell-1}$, les $H^{F}_{\ell,\ell}$ tendent vers l'unité et les $H^{F}_{\ell,\ell'}$ $\ell \neq \ell'$ tendent vers zéro.

I.3.3 Des alcalins. [29,30]

En raison de la présence d'un coeur électronique, à l'intérieur duquel le potentiel vu par l'électron optique n'est pas coulombien, le mouvement de cet électron n'est pas séparable en coordonnées paraboliques. Les équations du mouvement paraboliques et sphériques restent cependant valables dans des domaines restreints de l'espace, respectivement hors du coeur électronique et assez près du noyau pour que l'influence du champ électrique extérieur soit négligeable. Si ce champ électrique n'est pas trop grand (petit en unités atomiques - c'est toujours le cas expérimentalement) les deux domaines de validité se recouvrent dans une région où la décomposition des fonctions propres paraboliques sur la base des fonctions d'onde sphériques se fait comme dans le cas précédent ; cela permet

d'obtenir pour la section efficace de photoionisation une expression comparable à (K) (dans le cas de modulation faible)

$$(K') \quad \sigma^{cF}(E) = \sigma_{\ell+1,\ell+1}(E)\, H^{cF}_{\ell+1,\ell+1}(E) + 2\sigma_{\ell+1,\ell-1}(E)\, H^{cF}_{\ell+1,\ell-1}(E) + \sigma_{\ell-1,\ell-1}(E)\, H^{cF}_{\ell-1,\ell-1}(E) \qquad [29]$$

dans laquelle les H^c (c pour coeur) se déduisent des H par les formules

$$(K'') \qquad H^{cF}_{\ell\ell} - 1 = (H^{F}_{\ell\ell} - 1)\cos 2\pi\,\mu_\ell$$

$$\text{et si } \ell \neq \ell' \qquad H^{cF}_{\ell\ell'} = H^{F}_{\ell\ell'} \cos \pi(\mu_\ell + \mu_{\ell'}) \ ,$$

μ_ℓ désigne le défaut quantique des séries de niveaux de moment cinétique ℓ de l'atome non perturbé. L'effet du coeur est simplement d'atténuer la modulation des termes de photoionisation "directe" par le facteur $\cos 2\pi\,\mu_{\ell=1}$ et la modulation du terme croisé par le facteur $\cos \pi(\mu_{\ell+1} + \mu_{\ell-1})$. La position et la période des modulations ne sont pas modifiées, mais les minimums et les maximums peuvent être inversés par des cosinus négatifs.

I.3.4 De l'ytterbium.

Dans les premiers états excités de l'atome, et dans ceux des séries de Rydberg convergeant vers la première limite d'ionisation, l'électron optique se meut autour d'un coeur de moment cinétique orbital nul, comme dans un alcalin (les configurations électroniques correspondantes sont précisées au Chapitre II) ; la section efficace de photoionisation en présence d'un champ électrique obéit donc encore en principe à une

formule du type (K') . Cependant il n'est plus possible dans l'ytterbium de définir le défaut quantique des séries de Rydberg en fonction de ℓ seul, à chaque valeur du moment cinétique orbital correspondent autant de séries et de valeurs de μ différentes qu'il y a d'états de spin et de moment cinétique total et, surtout, l'ytterbium possède de nombreux états doublement excités qui perturbent les séries convergeant vers la première limite d'ionisation [31] faisant varier leurs défauts quantiques en fonction de l'énergie. Pour ces deux raisons, les formules (K') et (K") établies pour les alcalins ne permettent pas de calculer simplement le taux de modulation des sections efficaces de photoionisation.

I.4 Conclusions.

Les modèles théoriques développés pour l'interprétation des spectres de photoionisation atomique en présence d'un champ électrique font ressortir les conclusions suivantes :

- La modulation observée au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul est entièrement expliquée dans un modèle hydrogénoïde, ses maximums correspondent à des valeurs successives du nombre quantique parabolique n_1 dans l'état excité.

- L'expérience ne donne pas le spectre de la densité d'états finals, mais le spectre de la densité de force d'oscillateur [16,20,28] : l'amplitude de la modulation de la section efficace de photoionisation dépend non seulement du continuum d'arrivée (valeur de m), mais aussi de la polarisation de la lumière excitatrice et de l'état de départ.

- Au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, les sections efficaces d'atomes alcalins ou de l'ytterbium doivent présenter la même modulation que celle de l'hydrogène, seulement atténuée en fonction des défauts quantiques de l'atome étudié [29,30].

II. MATERIEL EXPERIMENTAL.

Les méthodes expérimentales utilisées ont été dictées par le choix de l'atome d'ytterbium ; les raisons de ce choix sont exposées en premier. Dans le même paragraphe II.1 sont ensuite expliquées les expériences réalisées et la méthode employée.

Le paragraphe II.2 est consacré à la description du jet atomique et du dispositif produisant le champ électrique permanent. Le paragraphe II.3 donne les caractéristiques générales des lasers utilisés pour l'excitation, puis les particularités de chaque montage. Le paragraphe II.4 rassemble les méthodes de détection, d'acquisition et d'enregistrement des spectres de photoionisation.

II.1 Principe des expériences sur l'ytterbium.

II.1.1 Choix de l'Ytterbium.

Les expériences précédentes de photoionisation en présence d'un champ électrique [11,14,15] ont été réalisées sur les alcalins et les alcalino-terreux. Ces atomes ont a priori le comportement le plus simple car les configurations de leurs premiers niveaux excités ne diffèrent de celles de l'atome d'hydrogène que par la présence d'un cœur électronique à symétrie sphérique.

Cependant, l'objet de notre expérience était d'étudier précisément l'influence sur le phénomène de photoionisation en champ électrique des paramètres suivants :

- valeur de m_ℓ pour l'électron extérieur dans le niveau excité ;
- valeur de Δm_ℓ pour la transition conduisant au niveau excité ;
- valeur de ℓ de l'électron extérieur pour le niveau à partir duquel l'atome est porté vers le niveau excité.

Dans la plupart des cas les valeurs de ces paramètres ne sont pas simultanément bien définies. En particulier, dans les alcalins, m_ℓ n'est défini que pour les composantes extrêmes de chaque multiplet de structure fine [12] , voire hyperfine et, dans les alcalino-terreux, qui, possédant deux électrons optiques, ont de nombreux niveaux doublement excités sous la première limite d'ionisation, ℓ peut être "mélangé" par interaction de configuration.

L'ytterbium est un des rares éléments qui permettent d'opérer dans des conditions de pureté satisfaisantes. Soixante-dixième élément de la classification périodique, c'est une terre rare, l'avant-dernière de la famille des lanthanides ; sa configuration de couches complètes $4f^{14}6s^2\ {}^1S_0$ dans l'état fondamental conduit à deux classes principales de niveaux excités. La première correspond à l'excitation d'un électron de la couche 4f et contient les niveaux de configurations $4f^{13}n\ell\ n'\ell'\ n''\ell''$. La seconde correspond à l'excitation d'un seul électron, de la couche 6s , et contient les niveaux de configurations $4f^{14}6sn\ell$. La couche 4f restant alors complète, la seconde classe fournit un spectre comparable à celui d'un alcalino-terreux. On y trouve des niveaux singulets $4f^{14}6sn\ell\ {}^1L_L$ présentant peu de mélange de configuration, qui permettent de créer au voisinage de la limite d'ionisation des états dont la valeur de m_ℓ est parfaitement définie, à condition qu'on se soit affranchi de la structure hyperfine. Cette condition est satisfaite par exemple par l'excitation sélective d'un isotope pair, ce qui est facile dans le cas de l'ytterbium qui possède plusieurs isotopes pairs abondants, répertoriés dans le Tableau II-a [32] . Quand nous avons réalisé cette sélection, nous avons choisi l'isotope 174, le plus abondant.

Nombre de masse	Abondance (%)
168	0,14
170	3,03
171	14,31
172	21,82
173	16,13
174	31,84
176	12,73

Tableau II-a : Les isotopes de l'ytterbium naturel.

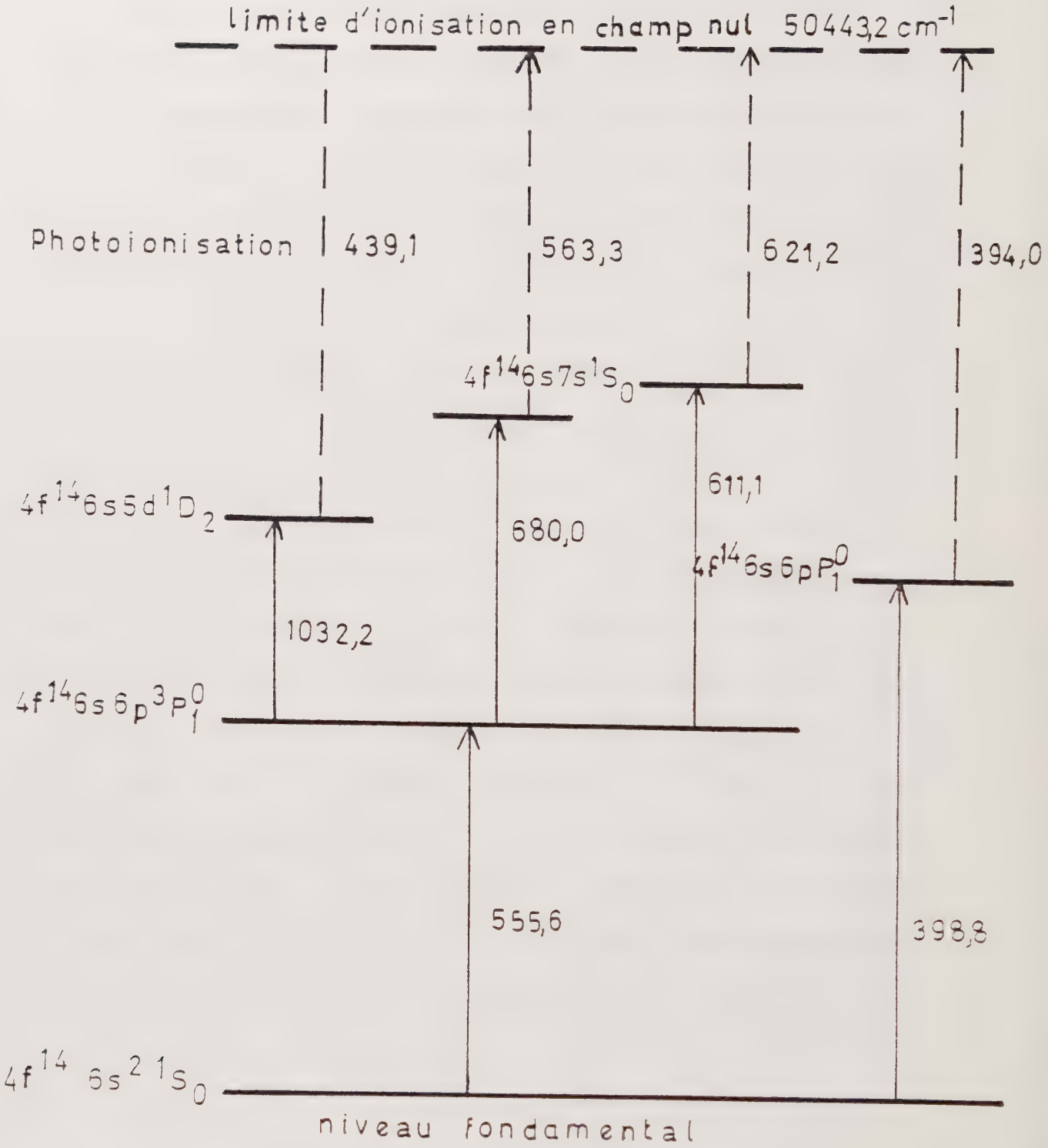


Figure II-1 : Schéma général des expériences d'excitation à étages réalisées dans l'ytterbium. Les longueurs d'onde sont données en nm . Au dernier étage, la photoionisation est effectuée par un laser à longueur d'onde variable , on a indiqué la longueur d'onde nécessaire pour atteindre l'énergie de la limite d'ionisation en champ nul.

Il faut remarquer que les niveaux $4f^{14}6sns\ ^3S_1$, s'ils présentent peu de mélange de configuration, fournissent aussi des états de départ de valeur de m_ℓ bien définie, car égale à zéro.

II.1.2 Choix des excitations et des polarisations.

En l'absence de champs extérieurs, la première limite d'ionisation de l'ytterbium, correspondant à la configuration ionique $4f^{14}6s\ ^2S_{1/2}$, a une énergie de 50443,2 cm^{-1} au-dessus du niveau fondamental [31]. A cette valeur s'adapte bien une excitation à deux ou trois étages dans le domaine visible. Nous avons fait quatre expériences, dont les schémas d'excitation sont donnés par la Figure II-1 ; les quatre niveaux à partir lesquels l'atome est ionisé, trois singulets, S, P et D , et un triplet, S , remplissent les conditions nécessaires à la sélection du moment cinétique orbital de l'électron extérieur. Leur énergie par rapport au niveau fondamental et leur pureté de configuration sont données dans le Tableau II-b [33,34].

Configuration	Energie (cm^{-1})	Pureté de configuration
$4f^{14}6s5d\ ^1D_2$	27677,665	96%
$4f^{14}6s7s\ ^3S_1$	32694,692	100%
$4f^{14}6s7s\ ^1S_0$	34350,65	99%
$4f^{14}6s6p\ ^1P^\circ_1$	25068,222	56%

Leur peuplement en un état de m_ℓ défini et l'excitation finale avec

une valeur de Δm_ℓ donnée sont réalisées au moyen de lumières de polarisations adaptées.

C'est fondamentalement pour cette sélection du nombre quantique magnétique qu'on exclut de peupler directement le niveau $^1D_2$ à partir du fondamental $^1S_0$, alors que la transition quadrupolaire électrique correspondant à 361 nm donne une raie observable dans le spectre d'émission de l'ytterbium [34]. En effet, dans cette excitation directe on ne pourrait peupler sélectivement $^1D_2$ qu'en $m_\ell = \pm 1$ en polarisation $\sigma_\pm$ tandis que $m_\ell = 0, \pm 2$ seraient irrémédiablement mélangés en polarisation π. On peuple donc le niveau $^1D_2$ de la même façon que les niveaux S, par une excitation à deux étages.

Il ne suffit pas de peupler les niveaux relais dans des états de m_ℓ bien définis, il faut encore qu'ils y restent entre deux excitations. C'est-à-dire qu'il ne faut pas qu'une éventuelle perturbation "mélange les m_ℓ" avant l'ionisation.

Nous avons observé une manifestation d'un tel mélange dans l'expérience de photoionisation via $^3S_1$, où la transition de deuxième étage - de $^3P_1$ à $^3S_1$ - a lieu entre niveaux de moments cinétiques totaux égaux. Cette transition est interdite en polarisation π si l'état initial de $^3P_1$ est de nombre quantique magnétique m_j nul, si bien qu'en pratique la configuration $\pi\pi$ des lasers de premier et deuxième étage ne devrait pas conduire au peuplement du niveau $^3S_1$. Or elle permet d'obtenir un signal de photoionisation de même importance que les autres configurations de polarisation ($\pi\sigma$, $\sigma\pi$ et $\sigma\sigma$).

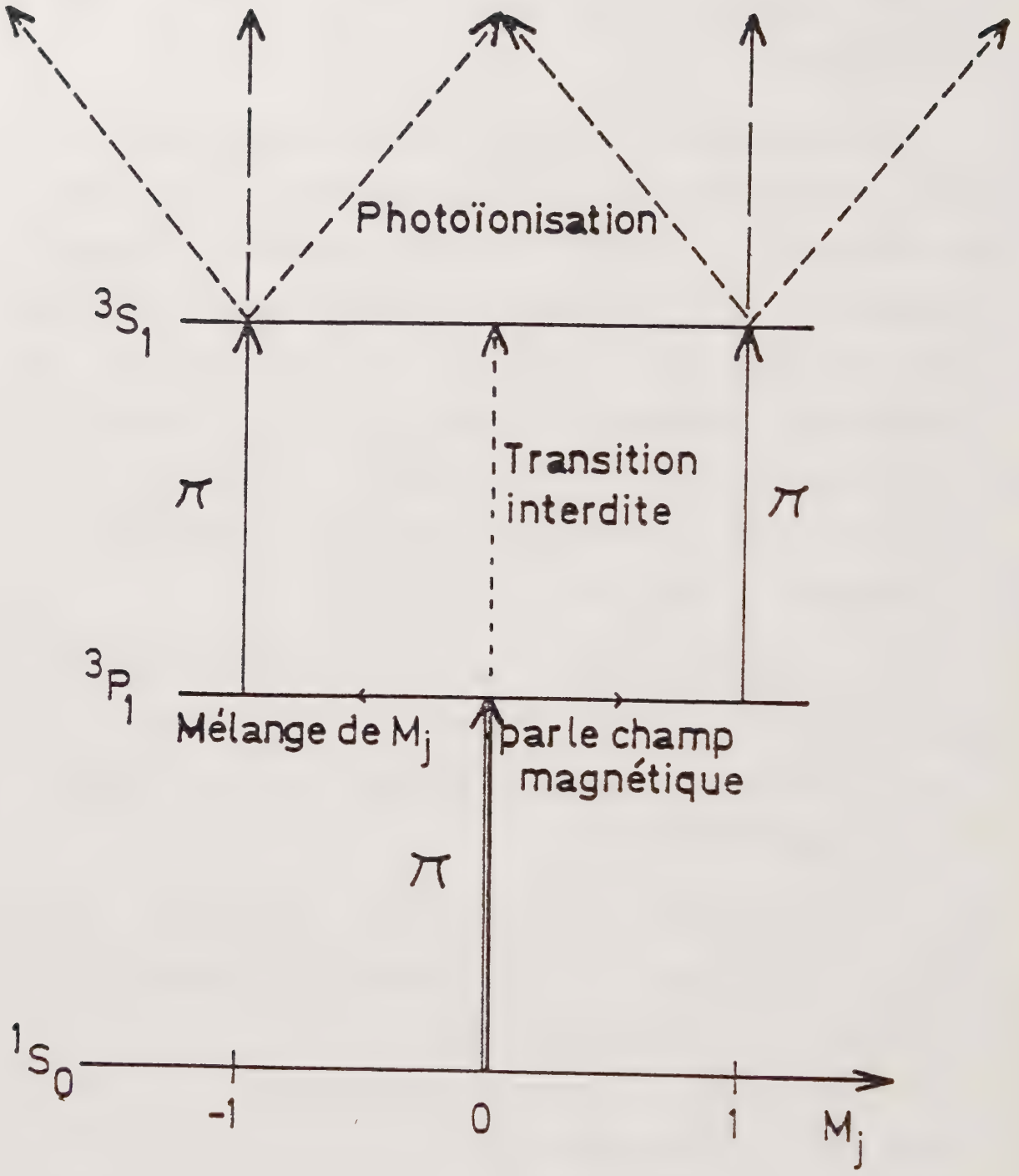


Figure II-2

Processus de photoionisation via $^3S_1$ en polarisations $\pi\pi$ (- - - -) ou $\pi\sigma$ (-----), lorsque le champ magnétique résiduel n'est pas compensé dans la zone d'interaction.

La présence du champ électrique permanent fournit une explication de principe : la symétrie sphérique de l'atome étant brisée, le moment cinétique total J n'est plus en toute rigueur un bon nombre quantique et l'interdiction de transition est levée. Mais $^3P_1$ et $^3S_1$ sont des niveaux profonds, peu perturbés par le champ électrique, et leur faible mélange avec des niveaux de J différent de 1 n'autorise pas la transition de $m_J=0$ à $m_J=0$ de façon appréciable.

L'explication pratique est plutôt la présence au niveau de la zone d'interaction d'un champ magnétique résiduel, résultant de la perturbation du champ magnétique terrestre par les objets voisins, en particulier le bâti du jet atomique, en acier. Ce champ magnétique n'est pas parallèle au champ électrique permanent et a pour effet de mélanger les états de différents m_J des niveaux intermédiaires, en particulier de peupler les états de nombre quantique magnétique $m_J = \pm 1$ du niveau $^3P_1$. L'excitation π vers le niveau $^3S_1$ à partir de ces états est permise et fournit, par le processus schématisé à la Figure II-2, le signal observé.

Cette constatation expérimentale nous a conduits à compenser le champ magnétique résiduel dans la zone d'interaction, au moyen de bobines alimentées en courant régulé. Nous n'avons pas mesuré le champ magnétique à compenser : nous avons directement ajusté l'intensité des courants parcourant les bobines pour que le signal de photoionisation, dans la configuration $\pi\pi$ des deux premiers étages, soit minimal. Le champ magnétique résiduel est ainsi compensé aussi complètement que le permet son homogénéité dans la zone d'interaction. Les meilleures compensations

produisent une atténuation du signal d'un facteur 10, et l'addition éventuelle d'un champ magnétique de 3 gauss parallèle à l'axe de quantification l'annule complètement (aucun ion n'atteint plus le détecteur).

La méthode présente en outre l'avantage de permettre un contrôle rapide de la compensation du champ magnétique résiduel avant chaque enregistrement de spectre de photoionisation à partir du niveau $^3S_1$: il suffit d'un changement de polarisations pour observer le signal $\pi\pi$ et le minimiser.

Pour les expériences à partir de $^1P_1^o$ et $^1D_2$, dans lesquelles ce contrôle ne peut plus avoir lieu, nous avons appliqué les mêmes courants de compensation que dans l'expérience via $^3S_1$. Dans l'expérience via $^1P_1^o$, cette compensation est d'ailleurs moins cruciale car l'atome est excité à partir de l'état fondamental par un laser pulsé, et reste très peu de temps (quelques nanosecondes) au niveau relais (voir paragraphe II.3).

Dans l'expérience de photoionisation à partir de $^1S_0$, niveau non dégénéré, il n'y a aucun mélange de m à craindre et nous n'avons pas compensé le champ magnétique résiduel.

II.I.3 Choix de la méthode.

Nos expériences ont été réalisées sur un jet atomique, comme les expériences précédentes sur les alcalins et les alcalino-terreux [11,14,15], c'est en effet le dispositif le plus commode pour étudier la photoionisation en présence d'un champ électrique avec un minimum de

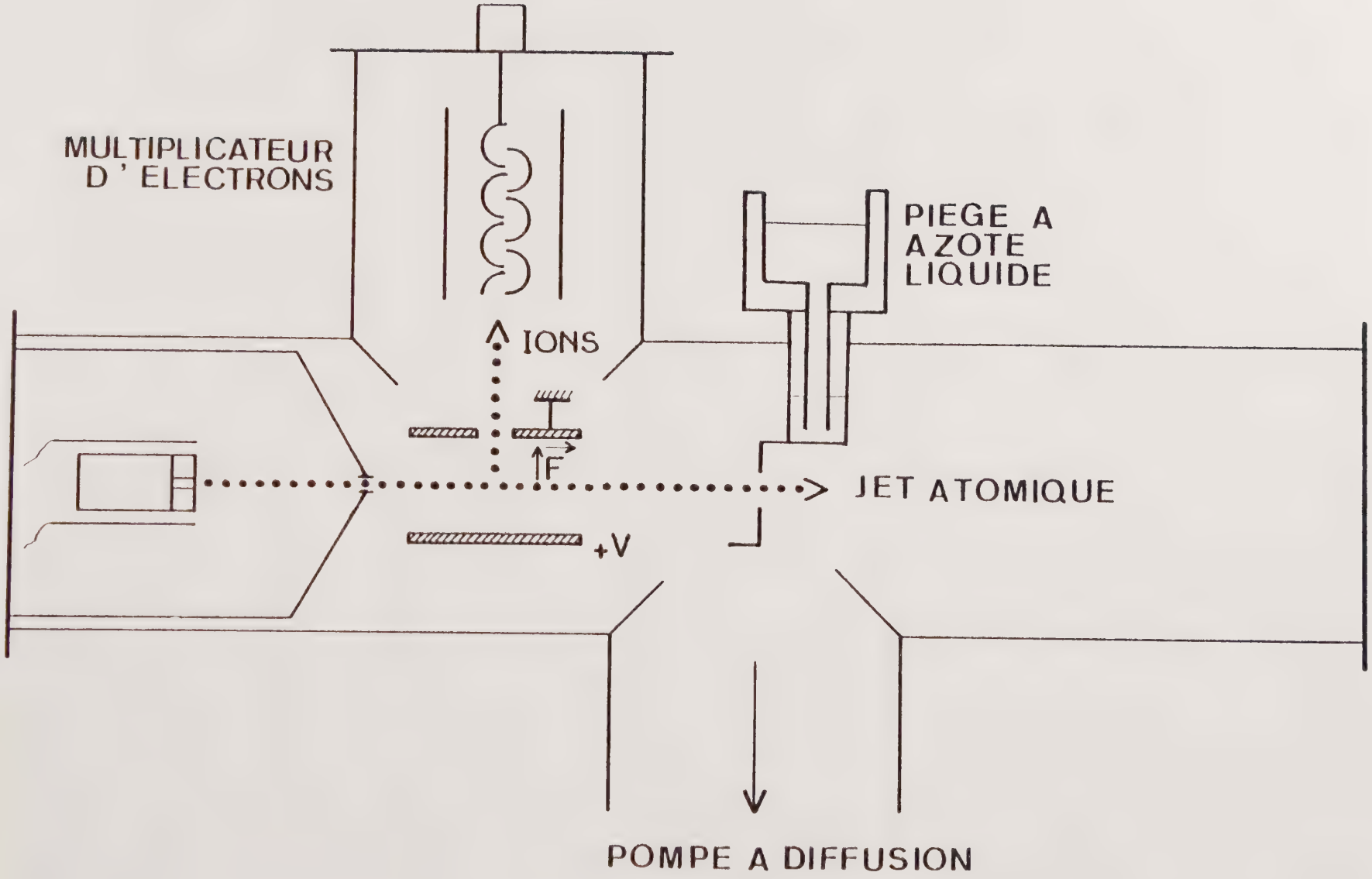


Figure II-3 : le jet atomique d'ytterbium.

perturbations parasites. Comme dans les deux premières expériences [14,15] , et comme il est habituel de le faire au laboratoire dans les expériences concernant les états de Rydberg, nous avons détecté les ions formés, et non les électrons. L'appareil utilisé est un multiplicateur d'électrons secondaires au moyen duquel la détection de particules positives est plus facile, parce qu'elle permet de maintenir l'anode à un potentiel voisin de celui de la masse, ce qui simplifie le couplage avec l'électronique de détection. Ce détecteur est décrit au paragraphe II.4.2.

II.2 Description du jet atomique.

II.2.1 L'enceinte.

L'appareil utilisé est celui qui a servi aux travaux de spectroscopie en champ nul de Luc Barbier [35,36] , légèrement modifié. La Figure II-3 en donne le schéma.

Le jet atomique est produit dans une enceinte dans laquelle un vide secondaire est maintenu par une pompe à diffusion d'huile ; au centre de l'enceinte un grand diaphragme en cuivre, refroidi à la température d'ébullition de l'azote, condense les vapeurs résiduelles et recueille l'ytterbium issu du jet. Le four fonctionnant, on obtient dans l'enceinte une pression de quelques 10^{-8} torrs.

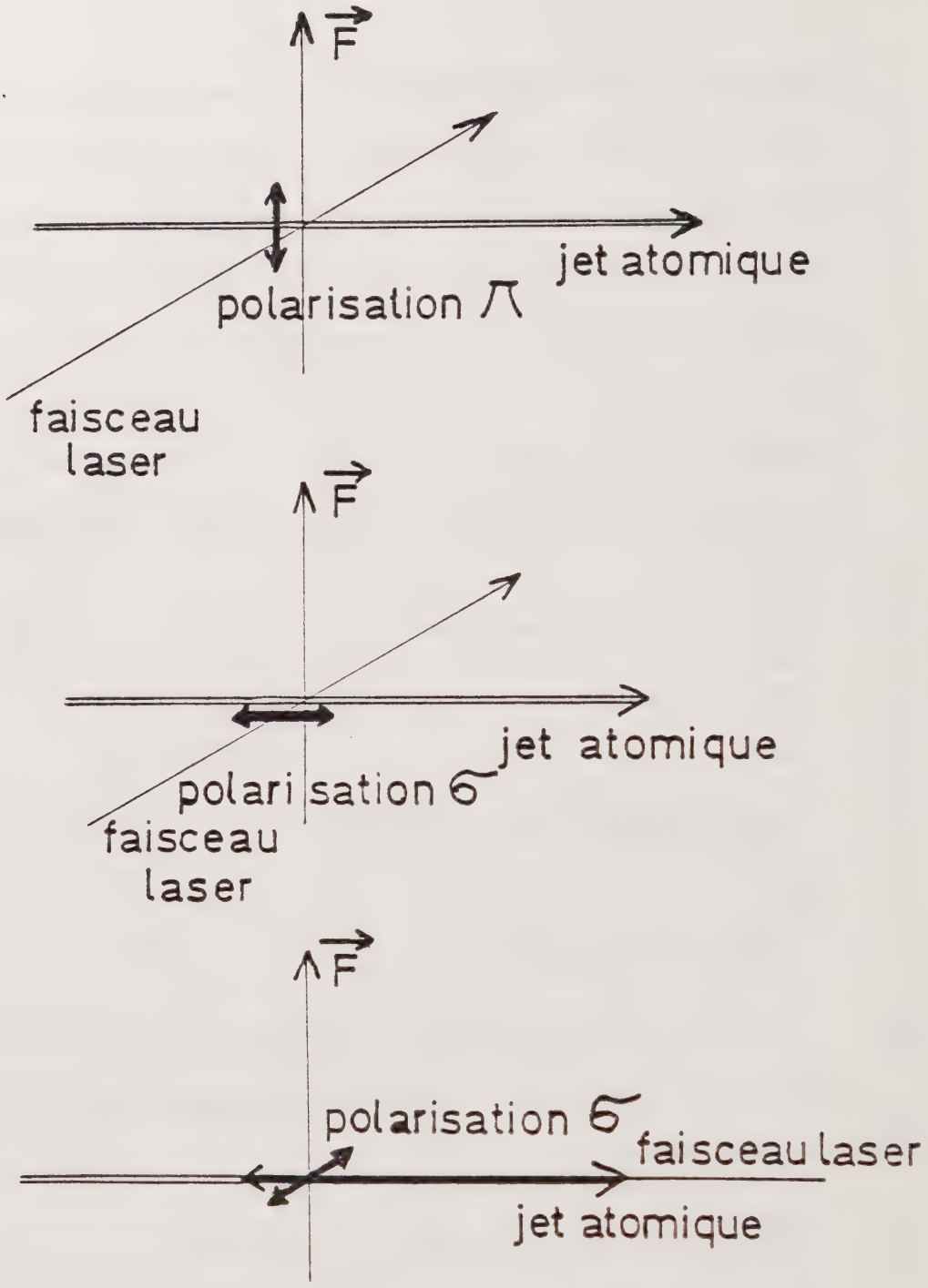


Figure II-1

Les trois polarisations possibles des faisceaux de lumière excitatrice dans la zone d'interaction : trois polarisations rectilignes orthogonales.

Le corps de l'enceinte est un cylindre en acier inoxydable, dont l'axe est confondu avec celui du jet. Le four est placé à une extrémité de l'enceinte, son orifice de sortie a un diamètre de 2 mm. Un écran, percé d'orifices latéraux permettant le pompage et d'un trou central de 3 mm de diamètre délimitant le jet, est placé à 5,5 cm en avant du four. La collimation obtenue est donc de 22.

La zone d'interaction entre les atomes et les faisceaux de lumière excitatrice est située à 8 cm de la sortie du four. Deux plaques de condensateur, placées au-dessus et au-dessous, distantes d'un demi-centimètre, permettent d'y appliquer le champ électrique permanent en présence duquel on étudie la photoionisation.

De part et d'autre de la zone d'interaction, sur un axe horizontal perpendiculaire à l'axe du jet, deux fenêtres en verre permettent le passage des faisceaux. Une troisième fenêtre est ouverte à l'extrémité de l'enceinte opposée au cour et permet l'introduction d'un faisceau colinéaire au jet atomique. La disposition de ces fenêtres montre que, dans tous les cas, les faisceaux lumineux qui traversent la zone d'interaction sont perpendiculaires à la direction du champ électrique permanent (vertical), et qu'il est impossible d'exciter les atomes du jet en polarisation σ_+ ou σ_- pure. On n'utilise donc que des faisceaux de polarisation rectiligne, dont les directions possibles sont données par la Figure II-4. Pour une direction donnée du faisceau, la polarisation orthogonale à π peut être considérée, du point de vue des transitions dipolaires électriques, comme la somme (ou la différence) des polarisations σ_+ et σ_-, nous la nommons σ. Dans les expériences où plusieurs

étages ont la polarisation σ , il faut d'ailleurs préciser si ces polarisations sont celles de faisceaux parallèles ($\sigma\sigma_{\parallel}$) ou perpendiculaires ($\sigma\sigma_{\perp}$), car des différences significatives apparaissent, toutes choses égales d'ailleurs, entre les deux cas.

II.2.2 Le four.

Il est constitué de trois parties :

- un creuset d'acier inoxydable, cylindrique, de 6 cm de long, qui, plein, contient environ 20 g d'ytterbium. En 1000 heures de fonctionnement nous n'avons pas eu à le recharger.

- un tube d'alumine entoure ce creuset. Il est percé longitudinalement de 24 canaux dans lesquels est câblé au plus court un fil résistant de tantale qui sert au chauffage, par effet Joule.

- un support en cuivre, en contact thermique avec la paroi de l'enceinte, refroidi par une circulation d'eau. Ce refroidissement, moyennant une puissance de chauffage suffisante, stabilise la température du four, empêche l'échauffement des parois de l'enceinte et, surtout, évite la détérioration des joints à vide voisins, en néoprène.

L'alimentation de chauffage du four est assurée par un générateur continu régulé en courant. Un thermocouple chromel-alumel permet de contrôler la température atteinte.

Pour les expériences utilisant une excitation à trois étages, nous avons adopté pour le chauffage un courant compris entre 1,1 et 1,2 A , fournissant une puissance comprise entre 35 et 48 W . La température

du four s'établit alors entre 340 et 390°C . Dans l'expérience utilisant une excitation à deux étages, la densité d'atomes nécessaire dans le jet est moins importante, nous avons utilisé un courant de chauffage de 0,9 A, fournissant une puissance de 23 W environ (la résistance du fil de tantale dépend de sa température). La température du four s'établit dans ce cas aux alentours de 290°C .

La vitesse des atomes dans le jet est de l'ordre de la vitesse la plus probable dans le gaz, $\sqrt{\frac{2kT}{M}}$, qui vaut, aux températures atteintes, environ 300 ms^{-1}.

Travaillant à partir de l'état fondamental de l'atome, nous n'avons pas eu à réaliser une préexcitation du jet comme Luc Barbier, et n'avons eu aucun des problèmes d'ions parasites que cette préexcitation fait en général apparaître.

II.2.3 Le condensateur.

On crée le champ électrique en appliquant une différence de potentiel constante entre les plaques parallèles situées au-dessus et au-dessous de la zone d'interaction. Ces plaques sont en acier inoxydable, leurs faces en regard sont polies, leur écartement, en principe un demi-centimètre, a été vérifié : il est de 4,98 ± 0,02 mm ; cette mesure est prise au centre des plaques, au niveau du croisement du jet et des faisceaux excitateurs, car les plaques présentent un léger défaut de parallélisme et de planéité et les valeurs extrêmes de leur écartement, sur les bords du condensateur (à 2 ou 3 cm du centre) sont 4,82 et 5,05 mm. Nous admettons que l'incertitude expérimentale sur la valeur du champ appliqué doit moins de 1% à

l'écartement des plaques.

Pour étudier les variations de section efficace de photoionisation, nous détectons les ions formés, et accélérés par le champ électrique. Pour le permettre, la plaque supérieure, au potentiel le plus bas, est percée d'un trou de 1 cm de diamètre qui laisse passer les ions vers le détecteur. Pour que l'homogénéité du champ électrique n'en soit pas gravement affectée, ce trou est recouvert d'une grille métallique soudée. Cette grille, coupée dans une fine grille d'acier, est beaucoup plus plane qu'un réseau de fils métalliques entrecroisés. Mais elle rend sans doute légèrement inhomogène le champ magnétique résiduel dans la zone d'interaction, ce qui empêche sa compensation complète (II.1.2).

La plaque supérieure ne doit pas retenir, et empêcher d'atteindre le détecteur, les ions qui l'ont traversée. Elle est donc reliée à la masse et la plaque inférieure est portée à un potentiel positif élevé. La haute tension est fournie par un générateur de tension de 0 à 5 kV (Bertan 205 A - 05 R) avec une incertitude de 0,5% par rapport à la tension affichée. L'incertitude totale sur le champ électrique appliqué est donc de l'ordre de 1,5%. Les valeurs de champ électrique qui peuvent être obtenues entre les plaques avec cet appareil sont comprises entre 0 et 10 $kVcm^{-1}$. Comme nous étudions un phénomène d'autant plus visible que ce champ est élevé, nous avons emprunté un générateur plus puissant pour enregistrer quelques spectres en champ électrique de 15 $kVcm^{-1}$. Mais l'isolement du fil haute tension au passage dans l'enceinte n'a pas été prévu pour des tensions très élevées et nous n'avons pu dépasser cette valeur. Nous avons du reste mesuré entre la haute tension et

la masse une résistance de fuite de 11 MΩ , surtout localisée au passage en question.

II.3 L'excitation à plusieurs étages par lasers.

Toutes les transitions atomiques utilisées ont été excitées par laser. Dans le paragraphe II.3.1 nous décrivons les lasers utilisés. Dans les paragraphes suivants nous exposons les particularités de leur utilisation dans chaque expérience.

II.3.1 Description générale des lasers.

a) Laser continu à 555,6 nm.

Les expériences d'excitation à trois étages ont en commun l'excitation, à partir de l'état fondamental de l'ytterbium, du niveau $4f^{14}6s6p\ ^3P^o_1$ à 17992,007 cm^{-1} . La longueur d'onde correspondante est de 555,6 nm. A la différence du niveau comparable du baryum, ce niveau peut être peuplé efficacement (jusqu'à 0,5 de population, parce qu'il n'y a pas d'états métastables vers lesquels il puisse se désexciter).

L'excitation est réalisée par un laser à colorant continu (Spectra Physics 580A), pompé par un laser à argon ionisé en configuration d'émission toutes raies. Un filtre interférentiel, un étalon Perot-Fabry solide et un étalon Perot-Fabry d'intervalle spectral libre 75 GHz, placés dans la cavité, permettent d'obtenir un fonctionnement monomode ,

l'intervalle spectral libre de la cavité est de 400 MHz. Le maximum de puissance est obtenu lorsque la bande passante de l'ensemble d'éléments disperseurs est centrée sur le mode de la cavité utilisé. Pour maintenir cette condition, l'étalon Perot-Fabry fin est monté sur une céramique piézoélectrique qui permet d'en modifier l'épaisseur. La tension qui lui est appliquée est légèrement modulée à la fréquence de 1000 Hz , ce qui entraîne une modulation à la même fréquence de la puissance de sortie du laser. Une détection synchrone de cette modulation, par l'intermédiaire d'une photodiode, fournit un signal de correction qui est continûment intégré à la tension appliquée à la céramique piézoélectrique. Le laser est asservi de cette façon à un gain maximum.

Pour faire varier continûment la fréquence de sortie du laser, on déplace le miroir de sortie, également monté sur céramique piézoélectrique, parallèlement à l'axe de la cavité. Si ce mouvement est assez lent le système d'asservissement de l'étalon Perot-Fabry fait suivre la bande passante des disperseurs de la cavité. La plage d'accord continu ainsi disponible est de 3 GHz . Pour l'asservissement de la fréquence de sortie du laser sur la transition atomique, une partie du faisceau est prélevée par une lame de verre et excite la fluorescence atomique en fin de jet. L'asservissement est réalisé sur le maximum de cette fluorescence, suivant les mêmes principes que l'asservissement de l'étalon interne sur le maximum de gain avec pour seules différences que la fréquence de modulation de la céramique du miroir de sortie est de 400 Hz et que la fluorescence est détectée par un photomultiplicateur.

Le colorant utilisé est la rhodamine 110 (560) en solution dans

l'éthylène-glycol (éthanediol 1,2) ; un refroidissement par une circulation d'eau en stabilise la température pour empêcher de trop grandes variations d'indice du jet et des variations de la longueur optique de la cavité qui dépasseraient la course du miroir de sortie. Le faisceau de lumière obtenu a une puissance de l'ordre de 40 mW, il est dirigé sur le jet atomique en incidence normale afin d'éliminer l'effet Doppler et de permettre la sélection isotopique. Le faisceau n'est pas focalisé sur le jet pour éviter les effets de puissance, tout en saturant la transition.

Le laser continu fournit un peuplement stable du premier niveau relai $^3P_1^o$ et a l'avantage de ne pas poser de problèmes de synchronisation avec les lasers des étages supérieurs.

b) Lasers à colorant pulsés.

Ils sont deux : on dispose d'un laser à longueur d'onde fixe et d'un laser à longueur d'onde variable. Ces lasers sont pompés par un laser à azote construit au laboratoire, qui fournit des impulsions d'une durée de 5 ns et d'une puissance crête de 500 kW à la cadence de 10 Hz. Les lasers à colorant sont du type décrit par Hänsch [37] . La cavité est fermée à une extrémité par un miroir en verre nu , à l'autre par un réseau blazé à 34°, à 600 traits par millimètre et travaillant dans l'ordre 5. Le pouvoir de résolution du réseau étant proportionnel au nombre de traits éclairés, on étale le faisceau sur toute la largeur du réseau au moyen d'un système afocal (télescope). Le faisceau de pompage, transversal, est focalisé sur la cuve à colorant par une lentille cylindrique. Dans le laser à longueur d'onde variable, le balayage est obtenu par rotation du réseau autour d'un axe perpendiculaire à l'axe optique de la cavité et

TABLEAU II-c

Niveau de départ pour la photoionisation		$^1D_2$	$^3S_1$	$^1S_0$	$^1P^o_1$
Laser à longueur d'onde fixe	λ (nm)	laser à colorant remplacé par un oscillateur paramétrique	679,9	611,1	398,8
	colorant		ox.720 (10')	rh. B (610)	PBBO
	solvant		éthanol	éthanol	7/10 toluène 3/10 éthanol
	circulation		non	oui	non
Laser à longueur d'onde variable	λ de la limite d'ionisation en champ nul	439,1	563,3	621,2	394,0
	domaine de λ (nm)	434-453	557-587	605-636 , 616-651	373-396
	colorant	cou.440	cou. 540A	rh. B (610), rh. 640	BBQ
	solvant	éthanol	éthanol	éthanol	5/10 toluène 5/10 éthanol
	circulation	oui	oui	oui	non

parallèle aux traits. Cette rotation est commandée par un moteur pas à pas entraînant le support du réseau de telle façon que le balayage obtenu soit linéaire en longueur d'onde. La raie émise a une largeur de 0,5 cm^{-1}.

Les colorants utilisés sont décrits dans le Tableau II-c.

Pour l'étalonnage en énergie des spectres obtenus on mesure au moyen d'un spectroscope à réseau les longueurs d'onde de départ et d'arrivée du balayage. Les longueurs d'onde intermédiaires s'en déduisent par interpolation linéaire sur l'enregistrement graphique. Pour réduire l'erreur donnée par l'étalonnage du spectroscope on choisit toujours la longueur d'onde de départ, ou la longueur d'onde d'arrivée, de sorte que la raie du laser à cette longueur d'onde se superpose dans le spectroscope à une raie de référence du néon, du krypton ou du mercure (cette superposition a lieu en général dans des ordres différents du réseau). Au dépouillement on obtient sur l'énergie atteinte dans le continuum de photoionisation une précision de l'ordre du cm^{-1}.

Le faisceau issu du laser à longueur d'onde variable est spontanément polarisé verticalement (π) et, pour lui donner la polarisation σ sans l'atténuer complètement, il faut un rotateur de polarisation. Plutôt qu'une lame $\frac{\lambda}{2}$ nous avons utilisé un double parallélépipède de Fresnel, pour deux raisons :

- le dispositif utilisé doit être achromatique,
- l'intensité transmise ne doit pas être modulée en fonction de la longueur d'onde (or c'est ce qui arrive avec une lame, par interférence entre ses faces et on reçoit cette modulation parasite sur le signal de

photoionisation).

Des rotateurs de polarisation du même type et des polariseurs permettent de définir aussi les polarisations des faisceaux à longueur d'onde fixe.

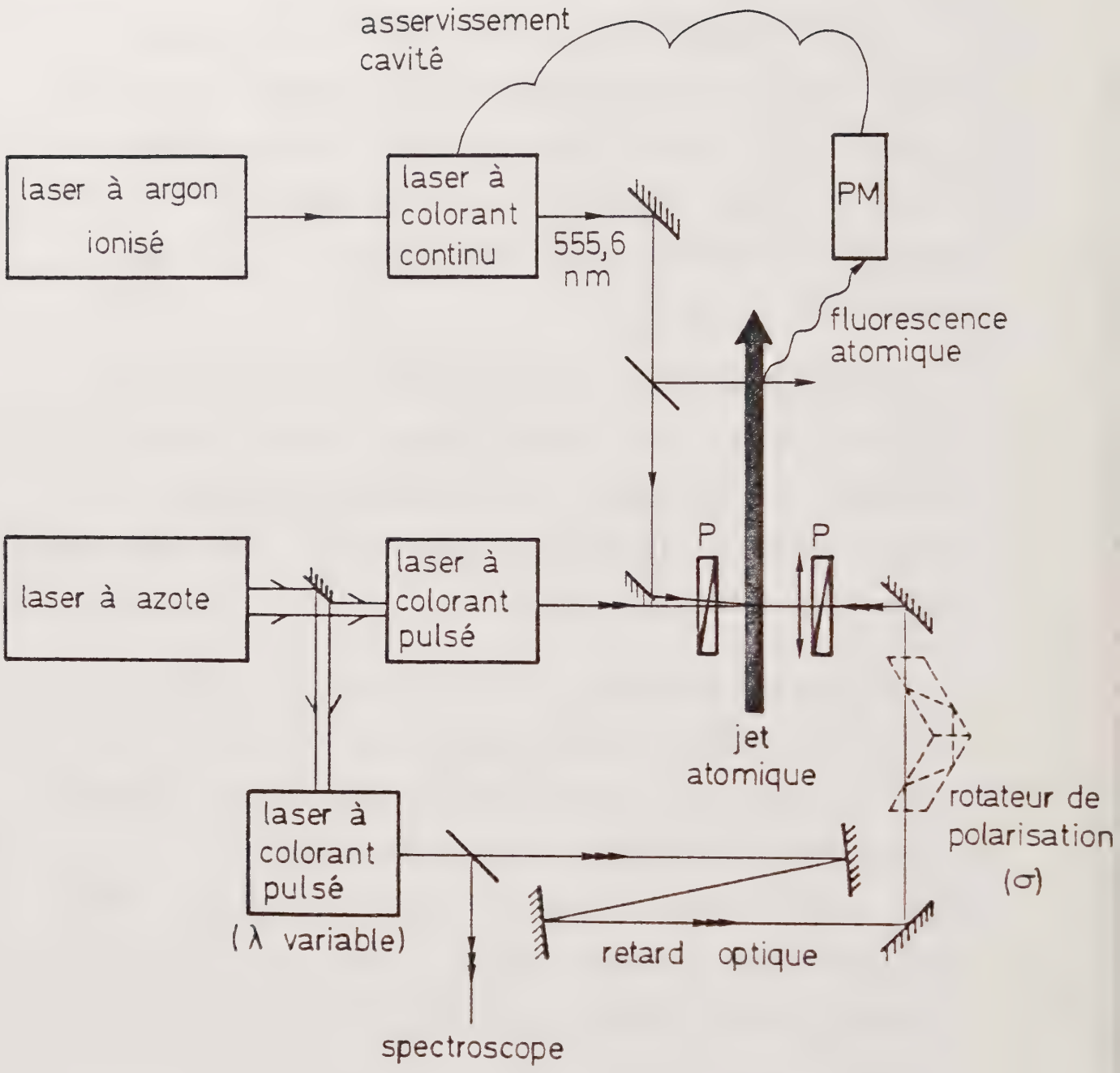
c) Le laser paramétrique.

Dans l'expérience de photoionisation à partir de $^1D_2$, le deuxième étage de l'excitation porte l'atome d'ytterbium du niveau $4f^{14}6s6p\ ^3P_1^o$ à 17992,007 cm^{-1} au niveau $4f^{14}6s5d\ ^1D_2$ à 27677,665 cm^{-1}. Comme actuellement aucun laser à colorant ne peut fournir de lumière à la longueur d'onde correspondante de 1,0322 µm, nous avons utilisé un oscillateur paramétrique, pompé par un laser pulsé à grenat d'yttrium-aluminium dopé au néodyme (Nd^{3+} : YAG) . Dans ce laser (Chromatix 1000) l'excitation est produite par une lampe à éclairs, la lampe et le barreau de YAG étant placés le long des axes focaux d'une cavité cylindrique dorée, de section elliptique. L'impulsion laser est déclenchée dans la cavité par un interrupteur acousto-optique. Le YAG est refroidi à -40°C pour faciliter les inversions de population à niveau bas proche du niveau fondamental, ce qui permet d'obtenir 13 raies fondamentales, dans l'infrarouge proche ; on engendre les 13 raies visibles de longueur d'onde moitié en plaçant dans la cavité un cristal doubleur d'iodate de lithium ($LiIO_3$). En l'occurrence la raie émise est la raie rouge à 659 nm produite par le doublage en fréquence de la raie fondamentale à 1,318 µm . La durée des impulsions obtenues est de 150 ns et la puissance crête de l'ordre de 5 kW. Le taux de répétition est réglé à la valeur qu'impose la synchronisation avec le laser de troisième étage : 10 Hz.

L'oscillateur paramétrique (Chromatix 1020) est essentiellement constitué d'un cristal non linéaire de niobate de lithium ($LiNbO_3$) entre deux miroirs formant cavité optique. Le cristal convertit une partie de la lumière de pompage, de fréquence ν_p en deux lumières, de fréquences respectives habituellement nommées fréquence-signal ν_s et fréquence complémentaire $\nu_c = \nu_p - \nu_s$.

Les miroirs sont rendus très réfléchissants à la fréquence utile, ν_s , et transparents à la fréquence de pompage. La multiplication des passages de l'onde utile dans le cristal amplifie le phénomène de conversion aux fréquences de résonance de la cavité optique ; l'intervalle entre ordres de cette cavité est de 0,05 cm^{-1}.

Les fréquences engendrées sont celles qui satisfont à la condition d'accord de phase dans le cristal, l'accord à une fréquence donnée est réalisé par le réglage de la température du cristal. La raie infrarouge à 1,032 µm est obtenue, à partie de la raie du laser à YAG à 659 nm, à 394°C . A cette température, le cristal doit être maintenu sous atmosphère d'oxygène pour ne pas être détérioré par perte de cet élément ; pour cela un courant d'oxygène est entretenu autour du cristal. La pente de la courbe d'accord au point de fonctionnement est de -3,5 nm/°C . L'instabilité à court terme de la température du four contenant le cristal est de ±0,03°C , entraînant une instabilité en longueur d'onde de ±0,11 nm (soit en nombre d'onde de ±1 cm^{-1}) . A long terme la dérive de cette température est de ±0,10°C par jour, ce qui correspond à une dérive en longueur d'onde de ±0,35 nm (ou à une dérive en nombre d'onde de ±3,3 cm^{-1}). Ces valeurs s'appliquent à un four qui a atteint sa température d'équilibre,



P : polariseur

Figure II-5 : Plan du montage expérimental pour les expériences de photoionisation à partir des niveaux S

condition qui n'est en pratique réalisée qu'après au moins une heure de fonctionnement. La largeur de la raie utile obtenue est de 0,2 nm lorsque l'oscillateur est bien réglé et la dérive de la température du four nous a souvent obligés à le réaccorder plusieurs fois par jour.

II.3.2 Les expériences à trois étages.

a) Expériences via $^1S_0$ et $^3S_1$.

Dans ces deux expériences on utilise les mêmes lasers : laser continu au premier étage, lasers pulsés pompés par le laser à azote aux deuxième et troisième étages. Le plan du montage est donné par la Figure II-5. Dans l'expérience via $^1S_0$ une partie du faisceau U.V. va pomper un petit laser supplémentaire constitué d'une simple cuve contenant (pour des raisons purement historiques) une solution de coumarine 440 (bleu), qui fournit, par l'intermédiaire d'une photodiode, un signal de déclenchement très stable aux appareils de détection. Dans la cavité du laser à longueur d'onde fixe de 611,1 nm un étalon Perot-Fabry d'intervalle spectral libre 1 cm^{-1} et d'une finesse de l'ordre de 15 est placé entre le télescope et le réseau. Dans l'expérience via $^3S_1$, nous avons eu quelques difficultés à obtenir une raie laser à 679,9 nm et nous avons dû enlever l'étalon Perot-Fabry de la cavité, arrêter la circulation du colorant et renforcer le pompage en utilisant pour cela le faisceau U.V. du laser annexe, abandonné.

La synchronisation des deux lasers pulsés est parfaite puisqu'ils sont pompés par le même laser à azote. Le retard nécessaire du troisième

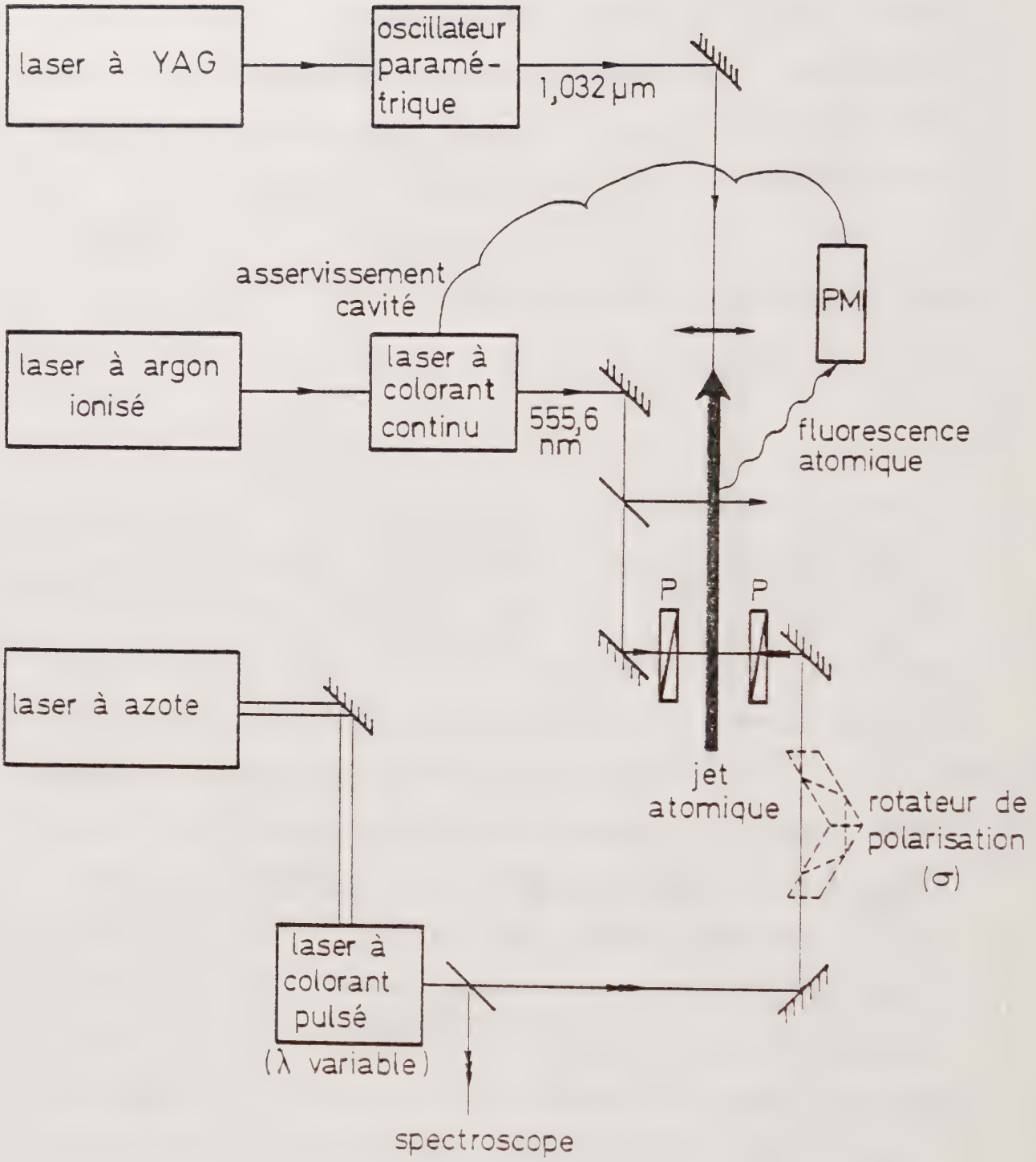


Figure II-6 : Plan du montage expérimental pour l'expérience de photoionisation à partir du niveau $^1D_2$

étage sur le second est donné par un allongement de quelques mètres du trajet optique du faisceau à longueur d'onde variable, entre la sortie du laser et la zone d'interaction.

Les deux faisceaux pulsés éclairent le jet atomique en incidence normale, c'est-à-dire sans effet Doppler.

Le faisceau de deuxième étage est introduit par la même fenêtre que le faisceau continu et n'est pas focalisé. Le faisceau de longueur d'onde variable est introduit par la fenêtre opposée et focalisé dans la zone d'interaction par une lentille de courte distance focale. Dans l'expérience via $^1S_0$, la longueur d'onde de la transition de deuxième étage (611,1 nm) est plus petite que la longueur d'onde nécessaire pour atteindre ensuite la limite d'ionisation en champ nul, de sorte que des atomes sont ionisés à partir du niveau $^1S_0$ par un deuxième photon du laser de deuxième étage. Le signal supplémentaire dû à ce processus est constant et ne gêne l'étude des variations du signal de photoionisation dû au processus normal qu'en détériorant un peu le rapport signal sur bruit. L'importance de ce fond parasite décroît d'ailleurs lorsqu'on diminue la densité d'énergie du faisceau de 2ème étage (c'est pourquoi il ne faut surtout pas le focaliser).

b) Expérience via $^1D_2$.

Le plan du montage est donné par la Figure II-6. Dans une expérience préliminaire nous avons utilisé au premier étage le laser à colorant pulsé à longueur d'onde fixe au lieu du laser continu. Le colorant utilisé pour obtenir la raie laser à 555,6 nm était la coumarine 540 A en solution dans

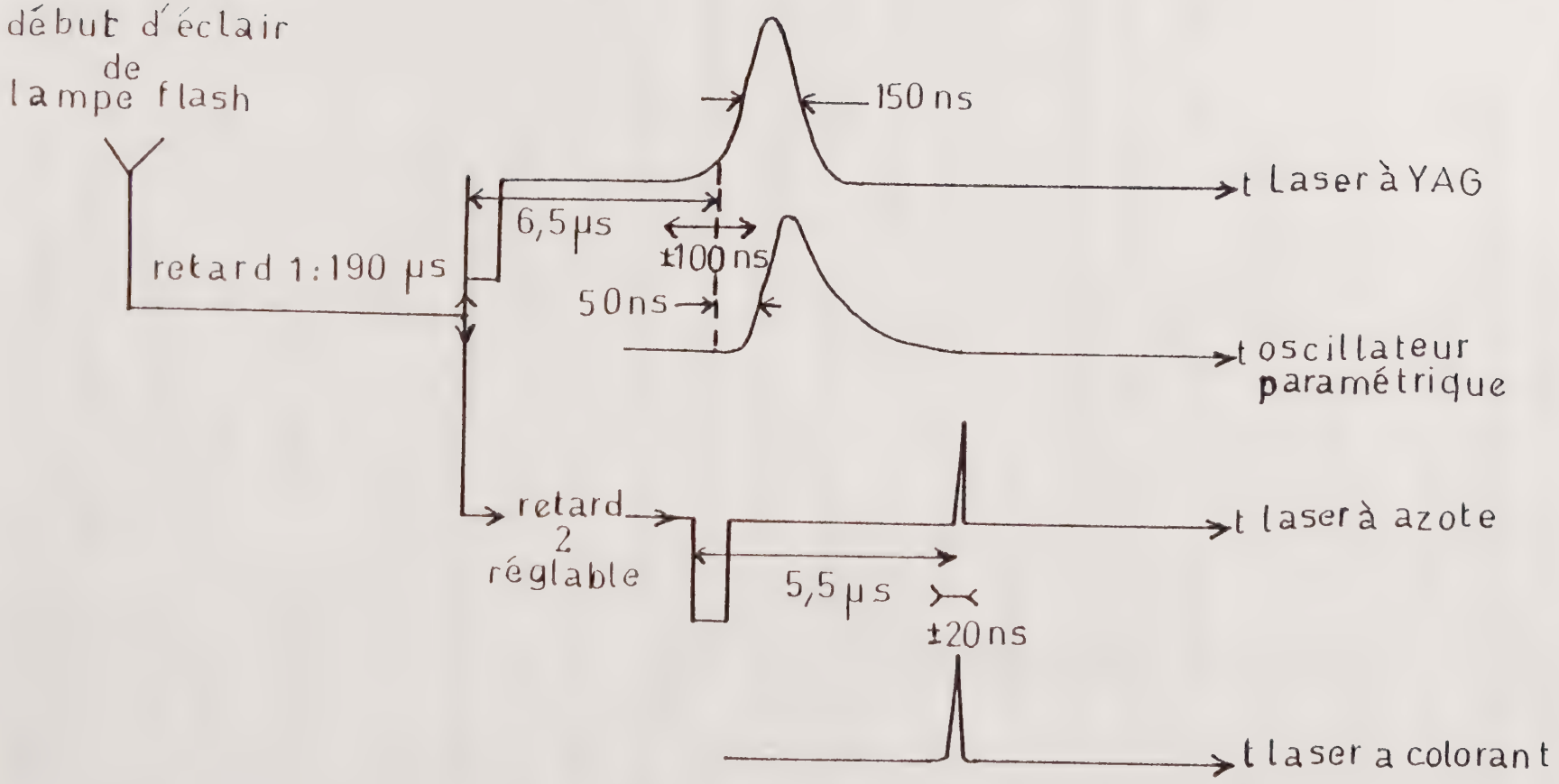


Figure II-7 : Délais de déclenchement.

l'éthanol, en circulation.

Synchronisation : Pour que l'excitation à trois étages ait lieu, il faut que l'impulsion de lumière bleue de troisième étage éclaire juste après l'impulsion de lumière infrarouge les atomes qui se trouvent dans la zone d'interaction, ce qui suppose qu'on synchronise le laser à azote et le laser à YAG. Les données du problème sont rassemblées sur la Figure II-7.

Pour un fonctionnement optimal du laser à YAG, l'interrupteur acousto-optique ("Q switch") est déclenché 190 µs après la lampe flash. L'impulsion de lumière rouge est émise 6,5 µs plus tard, avec une fluctuation temporelle de 100 ns au moins. L'impulsion de lumière infrarouge engendrée par l'oscillateur paramétrique a, sur l'impulsion de lumière incidente, un retard de 50 ns qui correspond au temps nécessaire à l'établissement de l'oscillation dans la cavité. Le laser à azote a un délai de déclenchement plus court, l'impulsion de lumière est émise par ce laser avec un retard de 5,5 µs sur l'impulsion électrique de déclenchement, avec une fluctuation inférieure à 20 ns. Le montage de synchronisation est schématisé par la Figure II-8.

Le réglage du retard de déclenchement du laser à azote par rapport à la commande de l'interrupteur acousto-optique a deux buts contradictoires :

- obtenir le maximum de signal. Pour cela il faut que l'impulsion du laser à azote arrive aussi tôt que possible après l'impulsion infrarouge.
- obtenir un signal stable. Pour cela il faut que l'impulsion du laser à azote n'arrive jamais avant la fin de l'impulsion infrarouge dont les

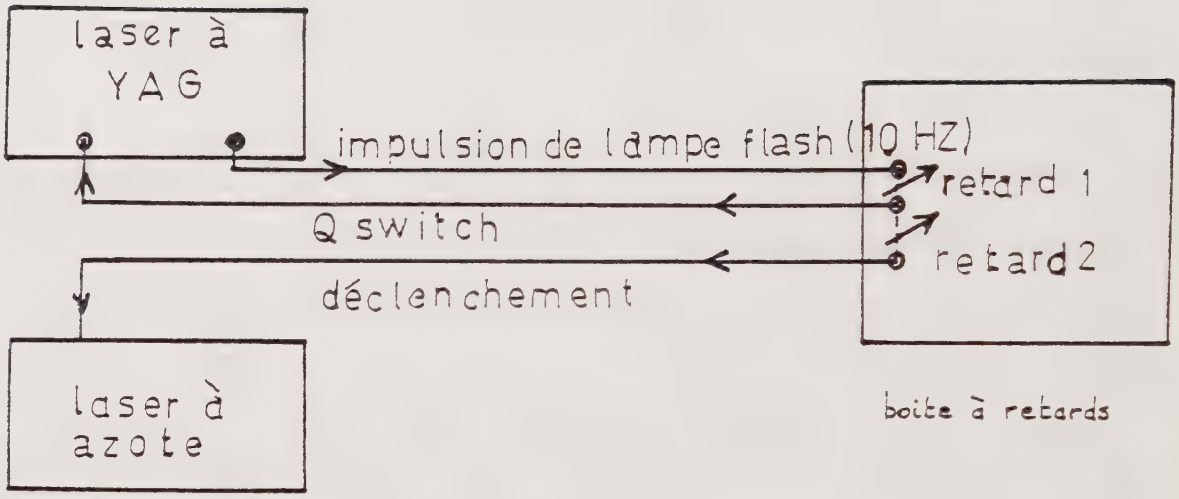

laser à
YAG
impulsion de lampe flash (10 HZ)
retard 1
Q switch
retard 2
déclenchement
laser à
azote
boite à retards

Figure II-8

fluctuations temporelles par rapport au déclenchement sont importantes.

En fait, l'expérience a montré que la durée de vie du niveau $6s5d\ ^1D_2$ est grande (environ 2 µs), de sorte qu'on peut donner à l'impulsion du laser à azote un recul confortable par rapport aux fluctuations de l'oscillateur paramétrique sans pratiquement atténuer le signal. Il convient cependant de ne pas choisir un retard inutilement grand : la compensation du champ magnétique résiduel n'est certainement pas parfaite et la sélection de m_ℓ en souffrirait.

Disposition des faisceaux : La répartition de la lumière infrarouge émise entre les modes de la cavité de l'oscillateur paramétrique et la position en fréquence de ces modes elle-même peuvent varier d'une impulsion à l'autre. Si le faisceau infrarouge éclaire le jet en incidence normale, c'est-à-dire sans effet Doppler, cette instabilité de l'oscillateur paramétrique engendre des variations considérables, et indésirables, de la population du niveau supérieur $^1D_2$. On préfère éclairer la zone d'interaction dans l'axe du jet (Fig. II-6). L'effet Doppler associé à la distribution thermique des vitesses élargit la résonance atomique et on vérifie expérimentalement que le signal de photoionisation est stabilisé. Le faisceau infrarouge est focalisé dans la zone d'interaction par une lentille de distance focale 50 cm.

Le faisceau de troisième étage est dirigé sur la zone d'interaction soit comme dans les expériences précédentes, mais sans polarisation, soit, lorsqu'on veut lui donner une polarisation σ parallèle à celle du faisceau infrarouge, parallèlement à ce dernier.

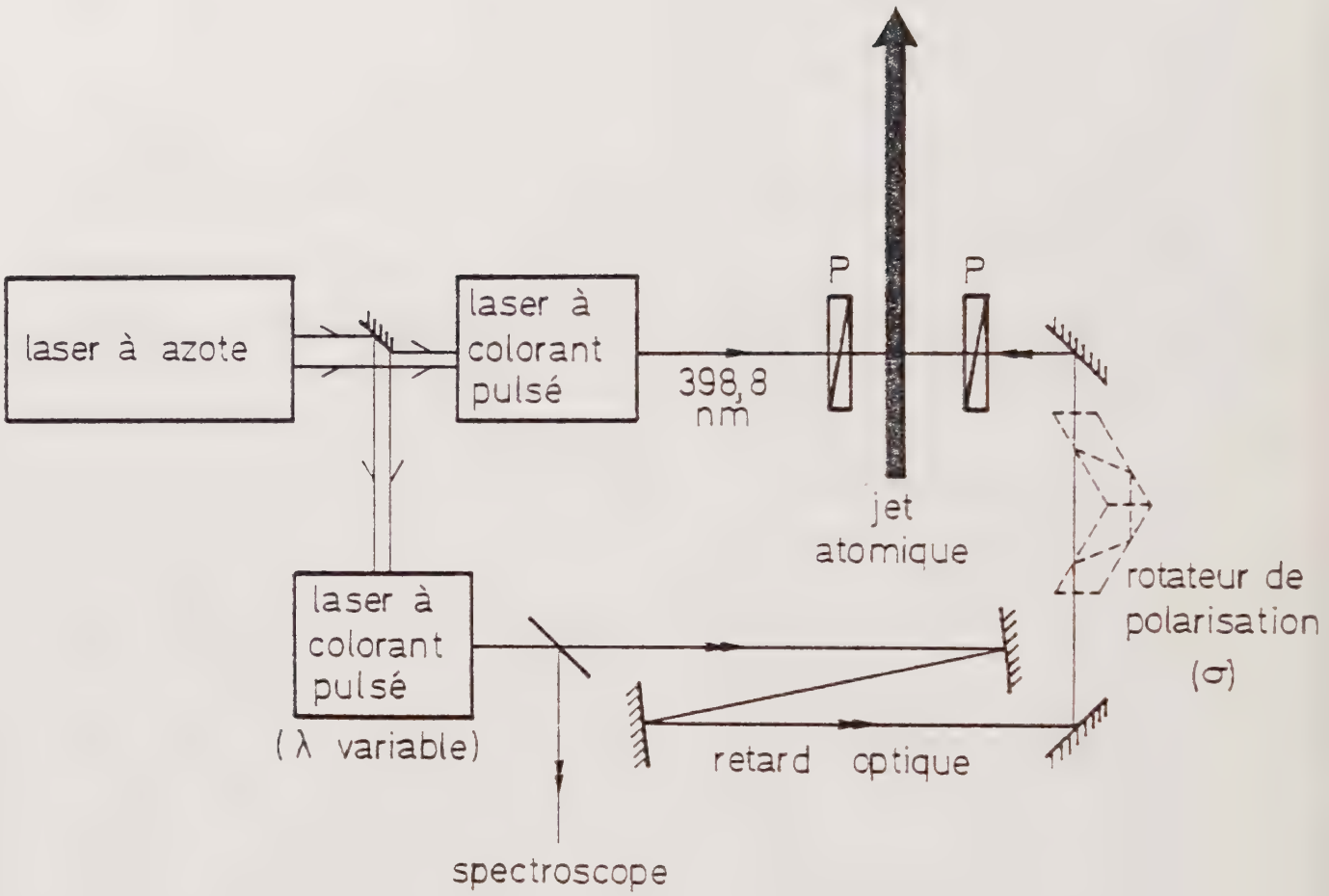


Figure II-3 : Plan du montage expérimental pour l'expérience de photoionisation à partir du niveau $^1P_1^\circ$

II.3.3 Expérience de photoionisation à partir de l'état $6s6p\ ^1P^\circ_1$.

Cette expérience utilise une excitation à deux étages et, à l'opposé des précédentes, réalise la photoionisation à partir d'un état impair de l'atome d'ytterbium. Le plan du montage est donné par la Figure II-9.

Les deux lasers à colorant, pompés par le même laser à azote, sont automatiquement synchronisés ; on allonge de quelques mètres le trajet du faisceau de deuxième étage pour lui donner un retard convenable par rapport au premier. La cavité du laser à longueur d'onde fixe ne contient pas d'étalon Perot-Fabry ; le faisceau émis éclaire le jet en incidence normale de la même façon que dans les expériences via niveaux S .

En champ élevé, en particulier à 10 $kVcm^{-1}$, on peut atteindre le continuum de photoionisation avec deux photons de premier étage (le niveau d'arrivée dans le continuum est à -307 cm^{-1} de la limite d'ionisation en champ nul). En ne focalisant pas le faisceau de premier étage, on rend négligeable le fond de photoionisation dû à ce processus.

Le faisceau de lumière à longueur d'onde variable est dirigé sur la zone d'interaction parallèlement au jet atomique lorsqu'on désire des polarisations σ orthogonales, perpendiculairement sinon il n'est pas focalisé. La raie laser violette de deuxième étage reste visible dans le spectroscope dans tout le domaine de longueur d'onde utilisé (jusqu'à 373 nm), et la méthode d'étalonnage n'est pas modifiée.

II-4 La détection.

II.4.1 La récolte des ions.

Le travail fourni aux ions par le champ électrique entre l'instant où ils sont formés, à égale distance des plaques, et l'instant où ils traversent la plaque supérieure est égal à $\frac{eV}{2}$. Aux tensions utilisées, on peut parfaitement écrire que c'est alors leur énergie cinétique verticale, en négligeant la part d'"énergie de liaison" E qui leur revient (voir paragraphe I.2.3) et la composante verticale de la vitesse des ions au passage de la plaque supérieure est donnée par la formule $v = \sqrt{\frac{eV}{M}}$. v va de 24000 ms^{-1} sous l'effet d'un champ de 2 $kVcm^{-1}$ (1000 V) à 45000 ms^{-1} sous l'effet d'un champ de 15 $kVcm^{-1}$ (7500 V). Comme la vitesse des atomes dans le jet, c'est-à-dire la composante horizontale de la vitesse des ions est toujours de l'ordre de 300 ms^{-1} dans tous les cas les ions traversent la plaque supérieure avec une vitesse pratiquement verticale.

II.4.2 Le détecteur.

Le détecteur est placé à 11 cm au-dessus de la zone d'interaction. C'est un multiplicateur d'électrons secondaires à 17 dynodes (Balzers SEV 317), qui, à la différence d'un PM, n'est pas enfermé sous vide dans une enceinte de verre mais dont le principe de fonctionnement est le même : un ion arrivant sur la première dynode (cathode) arrache un électron. Celui-ci est accéléré vers la seconde dynode où il provoque l'émission de plusieurs électrons secondaires, et le processus se répète sur les

dynodes suivantes. On obtient un gain de 10^8 pour une tension accélératrice de 3400 V.

Comme les impulsions de courant fournies sont amplifiées par un amplificateur rapide (bande passante 0,2 à 500 MHz) de gain 40 dB (Nuclétude 5-40-2 MHz) nous n'avons pas besoin du maximum de gain du détecteur et nous travaillons avec des tensions accélératrices comprises entre 2400 et 3000 V. La cathode est portée au potentiel négatif élevé, ainsi elle attire les ions, et la dernière dynode, où l'on recueille le signal, se trouve à un potentiel voisin de zéro.

II.4.3 Le traitement du signal.

Les ions arrivent au détecteur quelques microsecondes après la dernière impulsion lumineuse. Le détecteur traduit l'arrivée du paquet d'ions en un ensemble d'impulsions de courant, d'une durée de l'ordre de 500 ns, dont l'aire totale est proportionnelle au nombre d'ions détectés. Ce signal doit être transformé en un signal lentement variable, décrivant au cours du balayage le nombre d'ions formés en fonction de la longueur d'onde du dernier étage de l'excitation. L'opération est effectuée par un "boxcar" (intégrateur à porte automobile) (PAR 162 avec tiroir PAR 165) travaillant en intégrateur à porte fixe. A chaque impulsion le signal d'entrée est enregistré pendant l'ouverture de la porte, d'une durée Δt de 0,8 à 1 µs, et une quantité d'électricité proportionnelle à ce signal est stockée de manière analogique dans un condensateur, aux bornes duquel on recueille le signal de sortie. Pour que ce signal ne croisse pas linéairement au cours du temps, le condensateur se décharge lentement lorsque

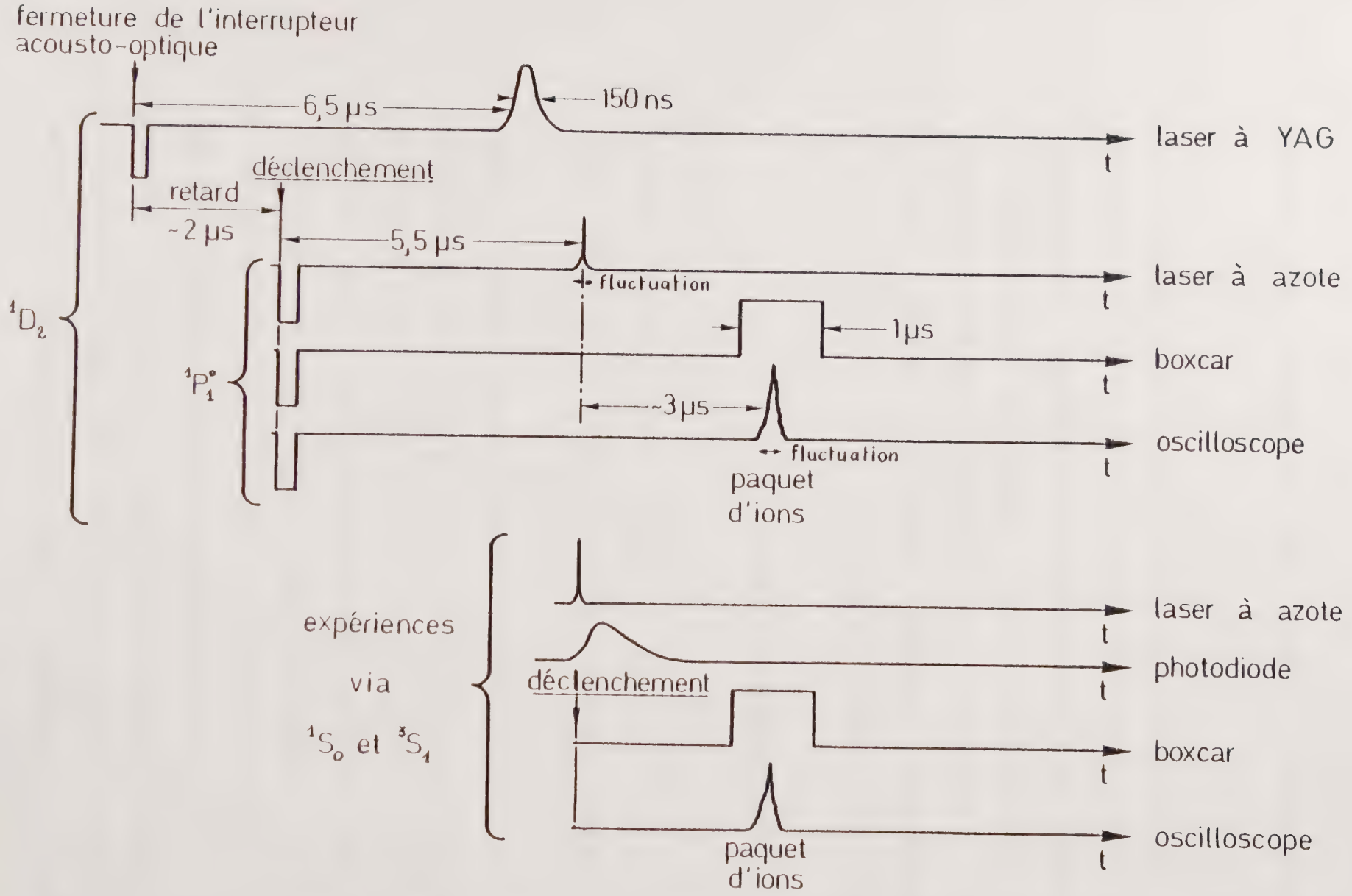


Figure II 10 Séquences de déclenchement de l'électronique d'acquisition dans les quatre expériences

la porte est ouverte avec une constante de temps τ réglable. Le signal de sortie est donc une moyenne exponentielle des signaux reçus, le nombre N de signaux moyennés en pratique étant de l'ordre de $\tau/\Delta t$. Nous avons choisi $\tau = 10\ \mu s$ ce qui fait moyenner une dizaine de coups ; les raisons de ce choix sont expliquées plus bas (paragraphe II.4.4).

Un oscilloscope cathodique permet de contrôler la bonne position des impulsions de courant dans la porte d'intégration. Le déclenchement du boxcar et de l'oscilloscope dépend des expériences (les différentes séquences de déclenchement sont rassemblées Figure II-10).

Dans les expériences de photoionisation via niveaux S , le déclenchement est fait par la lumière d'un laser pompé par le laser à azote : la synchronisation avec les impulsions de lumière excitatrice est parfaite. Dans les deux autres expériences, c'est la même impulsion de tension qui déclenche le laser à azote, l'oscilloscope et le boxcar, la synchronisation par rapport à la dernière impulsion de lumière excitatrice est alors affectée des mêmes fluctuations temporelles que le laser à azote. Dans l'expérience via $^1D_2$, cette impulsion de tension commune est déclenchée avec un retard convenable après l'interrupteur acousto-optique du laser à YAG ; dans l'expérience via $^1P^o_1$, le laser à azote restant seul laser de pompe, elle est simplement donnée par une horloge.

II.4.4 Amélioration du rapport signal sur bruit et enregistrement.

Nous cherchons à voir une faible modulation du signal de photoionisation, il est donc particulièrement important d'élever autant que possible le rapport signal sur bruit. On peut distinguer deux sources de bruit :

- le bruit statistique, produit par le système de détection composé de fréquences de l'ordre du hertz,

- le bruit dû aux fluctuations des lasers, en intensité et en fréquence.

Pour éliminer un bruit il suffit d'amortir le signal obtenu avec une constante de temps plus grande que les périodes qui le composent. C'est possible pour le bruit statistique, et ce rôle est joué par le boxcar : en moyennant sur 10 coups, à la cadence de 10 Hz, on amortit le signal avec une constante de temps d'une seconde. Pour que cet amortissement ne diminue pas la résolution, il faut diviser la vitesse de balayage d'un facteur proportionnel à la constante de temps, ainsi nous n'avons pas dépassé la vitesse de 3 $nmmn^{-1}$.

Mais il est impossible d'amortir de la même façon le bruit de fluctuation des lasers, qui se traduit sur le signal de photoionisation par des fluctuations lentes, dont on peut dire que les fréquences s'étendent jusqu'à zéro. Pour diminuer ce bruit là, nous avons répété et additionné les enregistrements au moyen d'un analyseur multicanal (Intertechnique SA41, puis Numélec Interzoom) travaillant en moyenneur. Après N enregistrements, le rapport signal sur bruit est théoriquement multiplié par le facteur $\sqrt{N}$. La répétition du balayage est rendue automatique et chaque départ d'un nouveau balayage déclenche une addition supplémentaire. Après une trentaine de passages, l'enregistrement final est reproduit par un enregistreur graphique ; on obtient par exemple un spectre couvrant un domaine de 15 nm en trois heures (il faut tenir compte du temps mis à revenir, après chaque balayage, à la longueur d'onde initiale, car l'acquisition n'a lieu qu'à longueur d'onde croissante. La vitesse de retour est cinq fois supérieure à la vitesse d'aller).

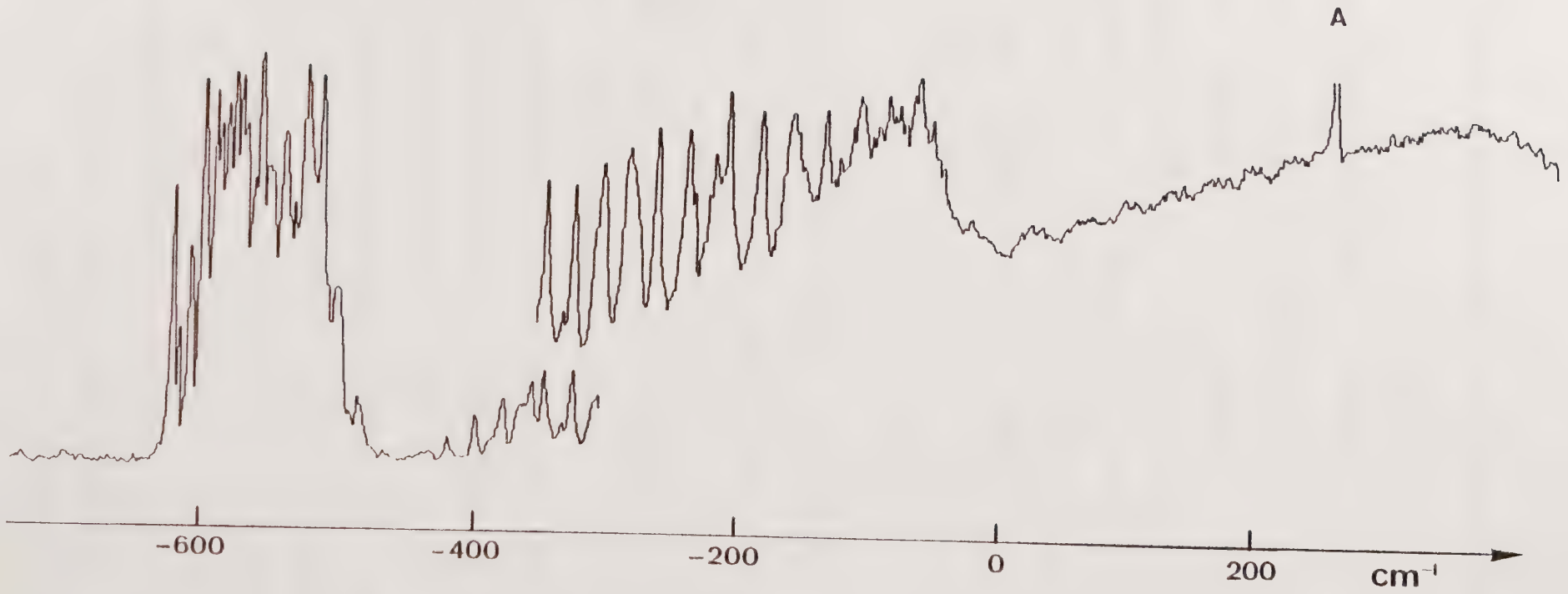


Figure III-1a

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 $kVcm^{-1}$ du niveau $6s7s\ ^1S_0$ de l'atome d'ytterbium. Polarisation π. Dans cette figure et dans les suivantes, l'origine des énergies est prise à la limite d'ionisation en champ nul, les lettres renvoient au texte, romaines : paragraphe III.1, grecques : paragraphe III.4.

III. RESULTATS.

III.1 Préliminaires.

III.1.1 Caractéristiques générales des spectres.

Les résultats bruts de l'expérience sont une collection de spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique d'intensité comprise entre 1 et 15 $kVcm^{-1}$. Ces spectres, enregistrés à basse résolution (de l'ordre de 0,5 cm^{-1}) s'étendent sur plusieurs centaines de cm^{-1}, du seuil classique d'ionisation à la limite d'ionisation en champ nul et un peu au-delà. Lorsque nous n'étudions pas l'influence des variations du champ électrique sur les phénomènes observés, ce champ est fixé à l'intensité maximum que nous permet le générateur haute tension usuel (5000 V), soit 10 $kVcm^{-1}$. Pour chacune des quatre expériences réalisées, un exemple de spectre est donné par la Figure III-1, à cette valeur du champ électrique.

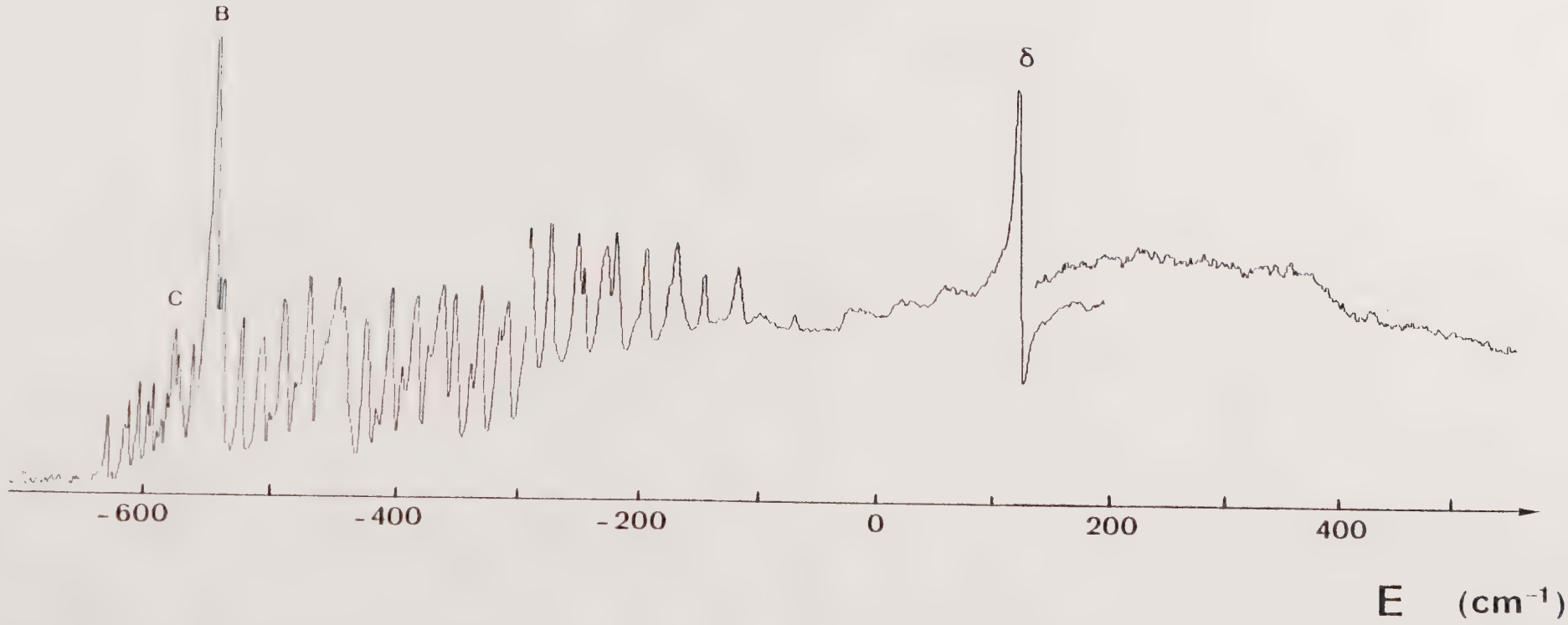


Figure III-1b

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 kVcm^{-1} du niveau $6s7s\ ^3S_1$ de l'atome d'ytterbium.

Polarisation π .

En dessous du seuil classique d'ionisation E_c l'atome ne peut plus s'ioniser que par effet tunnel, à un taux qui devient vite négligeable et dans cette région les enregistrements montrent un signal nul, ou un fond de photoionisation constant et faible dû à des processus parasites. La méthode expérimentale utilisée, qui ne met en jeu qu'un champ électrique statique, ne permet pas d'observer le spectre des états liés. Au-dessus du seuil classique d'ionisation, en raison du couplage par le coeur électronique tous les niveaux de l'atome sont ionisés. Certains restent cependant assez stables pour produire, juste au-dessus de ce seuil, des pics très fins dans les spectres de photoionisation (largeur < 1 GHz) ; leur asymétrie, caractéristique du couplage d'un niveau discret avec un continuum [10] a été mise en évidence sur l'exemple du rubidium [9].

Lorsqu'on s'élève en énergie, on observe encore des niveaux quasi-stables qui produisent une série de pics plus larges (de l'ordre du cm^{-1}) dans les spectres de photoionisation ; cette série s'étend jusqu'à une énergie légèrement inférieure à la limite d'ionisation en champ nul et qui dépend de la valeur m du nombre quantique magnétique de l'état atteint dans le continuum.

Alors que dans certains spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique d'alcalins le couplage des niveaux quasi-stables avec le continuum de photoionisation produit des pics très asymétriques (principalement lorsque la photoionisation a lieu vers des états finals de $m=0$) [13] , les pics larges observés dans l'ytterbium ne laissent apparaître aucune asymétrie. Autour de la limite d'ionisation en champ

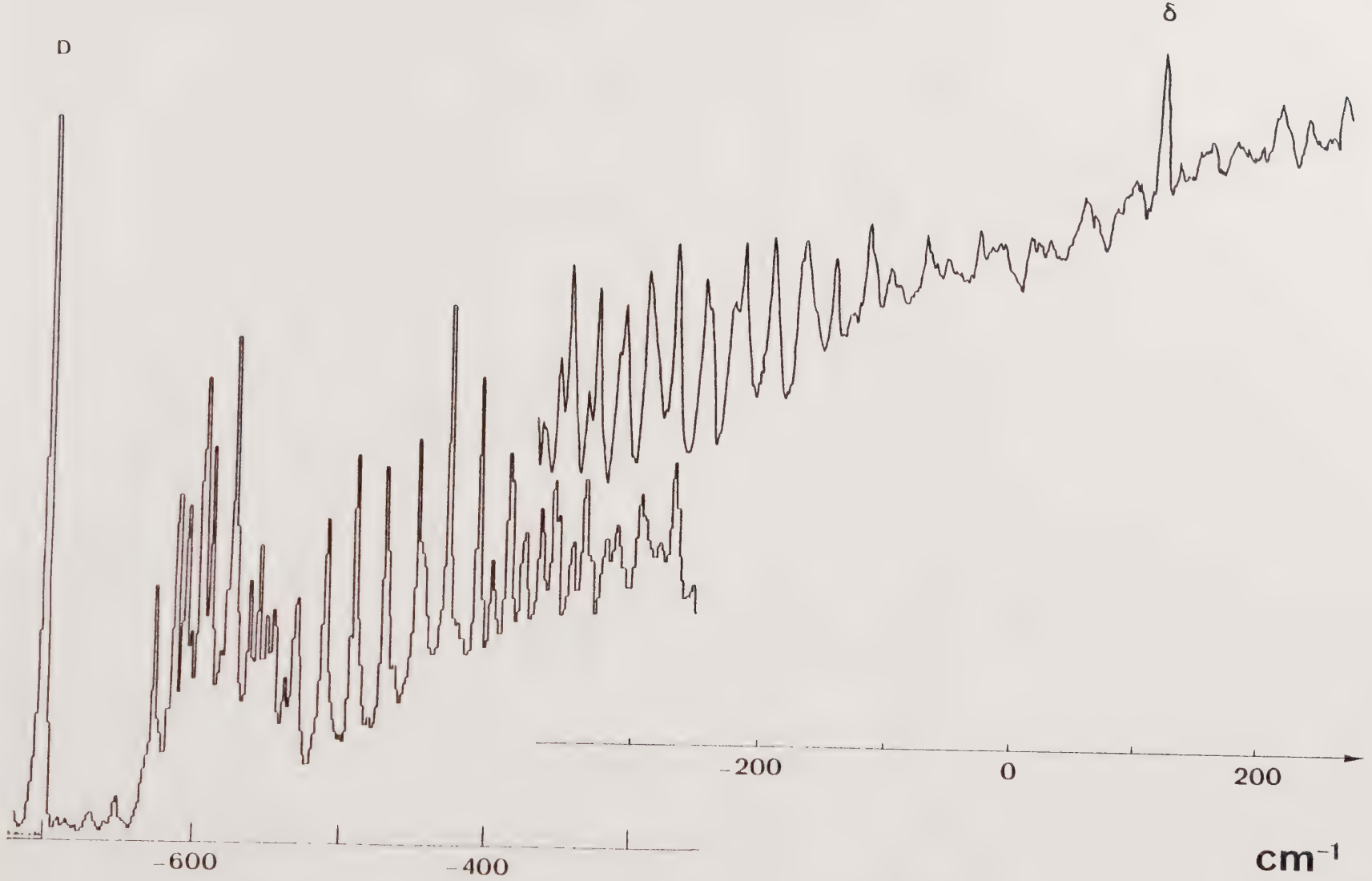


Figure III-1c

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 $kVcm^{-1}$ du niveau 5d6s $^1D_2$ de l'atome d'ytterbium. Polarisation π aux trois étages.

nul, le spectre se transforme progressivement d'un spectre de pics en un spectre plus ou moins plat selon qu'il présente ou non la modulation qui est l'objet principal de notre étude. Cette modulation s'atténue lorsqu'on s'élève en énergie et après quelques résonances, se perd dans le bruit.

III.1.2 Phénomènes parasites.

Les spectres de photoionisation en présence d'un champ électrique de l'atome d'ytterbium présentent en outre la particularité par rapport aux spectres correspondants d'alcalins de pouvoir être perturbés par la présence autour de la limite d'ionisation en champ nul de niveaux des configurations $4f^{13}\ n\ell\ n'\ell'\ n''\ell''$. Ces niveaux, qui sont responsables en particulier des trous du spectre de photoionisation via $^1S_0$ autour de 0 et -460 cm^{-1} et des profils de Fano des spectres $^3S_1$ et $^1P^o_1$ font l'objet du paragraphe III.4. Cependant certains pics parasites des spectres de photoionisation ne sont pas dus à la présence de niveaux supplémentaires mais seulement à des processus d'excitation différents du processus normal ; ainsi dans le spectre de photoionisation à partir du niveau $^1S_0$ apparaît un pic, saturant la détection, à 267 cm^{-1} (A). La position de ce pic correspond à une longueur d'onde du laser de troisième étage égale à celle du second ; dans cette situation le laser de troisième étage renforce le deuxième étage de l'excitation ; le pic observé est dû à la surpopulation correspondante du niveau $^1S_0$ et n'appartient pas à la section efficace de photoionisation.

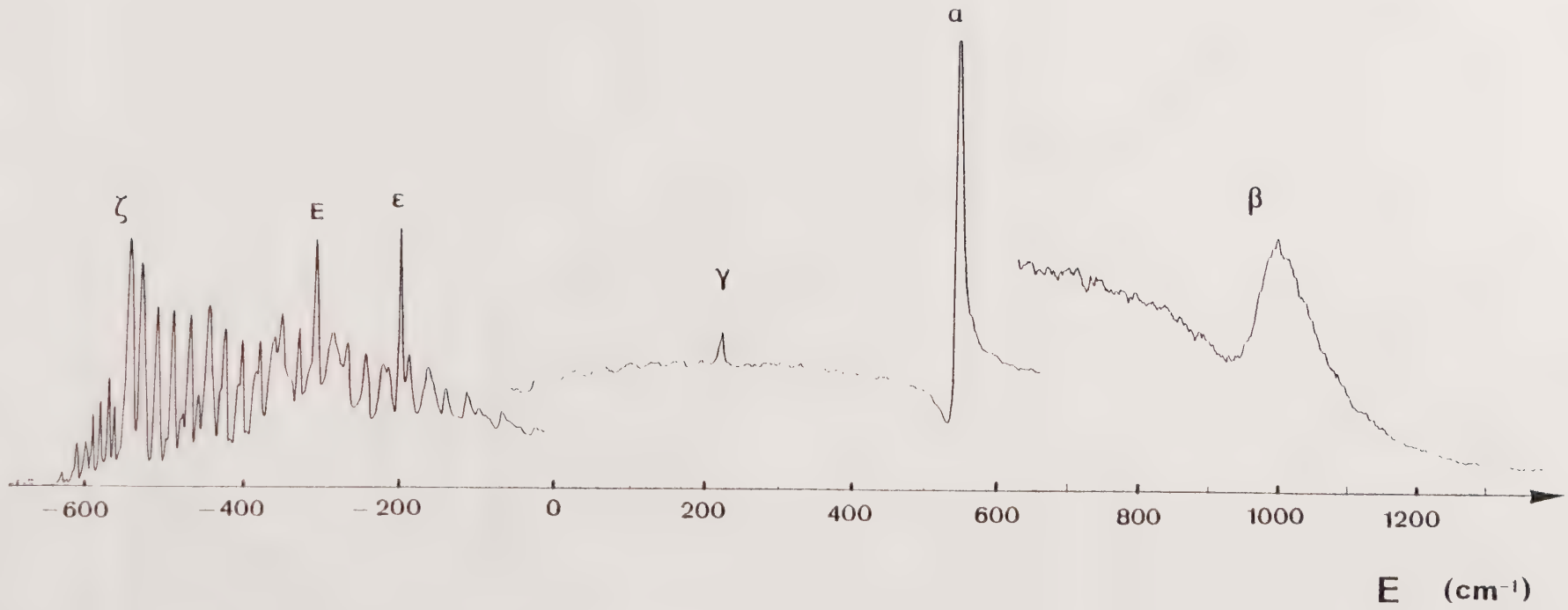


Figure III-1d

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 $kVcm^{-1}$ du niveau $6s6p\ {}^1P^o_1$ de l'atome d'ytterbium.

Polarisation π aux deux étages.

Aux spectres de photoionisation à partir de $^3S_1$ sont superposés deux pics qui subsistent lorsqu'on coupe les faisceaux laser à longueurs d'onde fixes, donc semblent traduire une excitation résonnante par le laser à longueur d'onde variable seul. Ces deux pics apparaissent dans la partie basse du spectre, non loin du seuil classique d'ionisation à 10 $kVcm^{-1}$; le premier, à 5811 Å (B) dépasse nettement en intensité les pics des niveaux Stark autoionisés, le second se situe à 5821 Å, un peu plus bas en énergie (C).

Ces pics n'appartiennent pas au spectre étudié. La longueur d'onde du premier est la même que celle de la transition du niveau $4f^{14}6s6p\ ^3P_1^o$ vers le niveau $4f^{13}\ ^2F_{7/2}\ 6s^2 6p(3/2)\ J=2$ (5810,67 Å) ; si cette résonance est bien responsable du pic observé (l'ionisation ayant lieu grâce à un deuxième photon de même longueur d'onde), il faut admettre que le niveau $^3P_1^o$ se trouve peuplé même lorsque le jet n'est pas éclairé par le laser continu vert de premier étage. L'explication la plus simple de ce peuplement fait intervenir la lumière de fluorescence du colorant utilisé au troisième étage : la longueur d'onde de la transition du niveau fondamental vers le niveau $^3P_1^o$, égale à 555,6 nm, se trouve dans la plage de fluorescence de la coumarine 540A, donc il est possible qu'un photon de fluorescence excite cette transition. Cependant un phénomène analogue, de peuplement de niveaux non directement excités, a déjà été observé dans la vapeur d'ytterbium [38,39,40] : dans une expérience de spectroscopie d'absorption à deux photons à partir du niveau fondamental on obtient des raies supplémentaires correspondant à une excitation en échelons à partir des niveaux $6s6p\ ^1P_1^o$, $5d6s\ ^3D_2$ et $^3D_3$. La

fluorescence du colorant ne peut expliquer le peuplement que du niveau $^1P^o_1$, encore cette explication est-elle rendue suspecte par la persistance du phénomène dans les cas où la plage de fluorescence du colorant utilisé ne contient plus la longueur d'onde correspondante, de la transition à partir de l'état fondamental de l'atome. De toute façon le peuplement des niveaux $^3D_2$ et $^3D_3$ doit être expliqué par un autre mécanisme, aussi est-il envisagé que ces états atomiques résultent de la dissociation de molécules excitées par le laser, par un processus analogue à ceux qui ont été mis en évidence dans des vapeurs d'éléments alcalins [41].

Mais l'ytterbium, contrairement aux alcalins, a dans son état fondamental une configuration de couches complètes et la molécule Yb_2 est une molécule de van der Waals, dont l'énergie de dissociation est de l'ordre de 1400 cm^{-1} [42] . Toutefois, en l'absence de renseignements sur les niveaux d'énergie de cette molécule, l'hypothèse d'un processus moléculaire pour le peuplement, dans le jet atomique, du niveau $6s6p\ ^3P^o_1$ ne doit pas être écartée.

Le pic C correspond à l'excitation à deux photons du niveau fondamental vers le niveau $^1S_0$ (longueur d'onde exacte : 5820,68 Å) et à l'ionisation à partir de ce niveau par un troisième photon de la même couleur. Le processus à deux photons explique que ce pic soit moins important que le premier.

Avec le spectre de photoionisation à partir de $^1D_2$ on observe en dessous du seuil classique d'ionisation à 10 $kVcm^{-1}$ un pic (D) d'ionisation à 4530 Å qui subsiste lorsqu'on supprime l'excitation infrarouge

de deuxième étage. Ce pic correspond à la transition du niveau $^3P^o_1$ vers le niveau $4f^{14}6s6d\ ^1D_2$ (au lieu de 6s5d) résonnante à 4529,87 Å et à l'ionisation par un deuxième photon du même laser.

Enfin sur l'enregistrement des spectres de photoionisation via $^1P^o_1$ apparaît comme dans le cas des spectres $^1S_0$ un pic (E) correspondant au renforcement de l'étage inférieur par le laser à longueur d'onde variable. La résonance a lieu à la longueur d'onde de 3987,99 Å et peut être observée en l'absence d'excitation par le laser de premier étage.

III.1.3 Plan de l'étude.

L'objet principal de notre étude est l'existence d'une modulation des sections efficaces de photoionisation en champ électrique au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. C'est aux résultats concernant cette modulation qu'est consacré le paragraphe 2.

Au paragraphe 3 les positions des niveaux Stark autoionisés observés en dessous de la limite d'ionisation en champ nul sont comparés aux positions des niveaux Stark les plus stables de l'atome d'hydrogène calculées au quatrième ordre de perturbation. Les anomalies provoquées par la présence de niveaux perturbateurs conduisent à leur consacrer le paragraphe 4 qui rassemble les résultats annexes que nous a fournis l'étude des spectres de photoionisation en champ électrique.

III.2 Modulation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul.

Cette modulation a été observée dans les quatre expériences. Elle est toujours faible - d'amplitude inférieure à 7% - et, selon le schéma d'excitation, le temps d'acquisition et l'analyseur multicanal utilisé, se distingue plus ou moins bien du bruit : nous n'avons pu mesurer ses caractéristiques que dans les cas où le taux de modulation est supérieur à 3%. Les résonances qui composent la modulation ne présentent pas d'asymétrie manifeste. Elle ne peut cependant être assimilée à une modulation sinusoïdale et ses minimums sont dans tous les cas mieux marqués que ses maximums. A 10 $kVcm^{-1}$, champ le plus couramment utilisé, nous avons comparé la position de ces minimums dans les quatre expériences, dans tous les cas de polarisation où la modulation est visible : à l'incertitude de mesure près, la position des minimums est la même dans tous les spectres. En d'autres termes toutes les modulations que nous avons observées sont en phase et nous n'avons pas mis en évidence d'inversion des minimums et des maximums, alors que la possibilité d'une telle inversion est suggérée par l'étude théorique de la photoionisation en champ électrique des alcalins [29] (voir paragraphe I).

Nous étudions successivement l'influence sur la modulation des deux paramètres principaux de l'expérience : l'intensité du champ électrique permanent et la polarisation des lumières excitatrices, liée à la nature des niveaux intermédiaires. Nous verrons que le premier agit essentiellement sur la période de modulation et que du second dépend crucialement le taux de modulation, comme le prédisent les modèles théoriques.

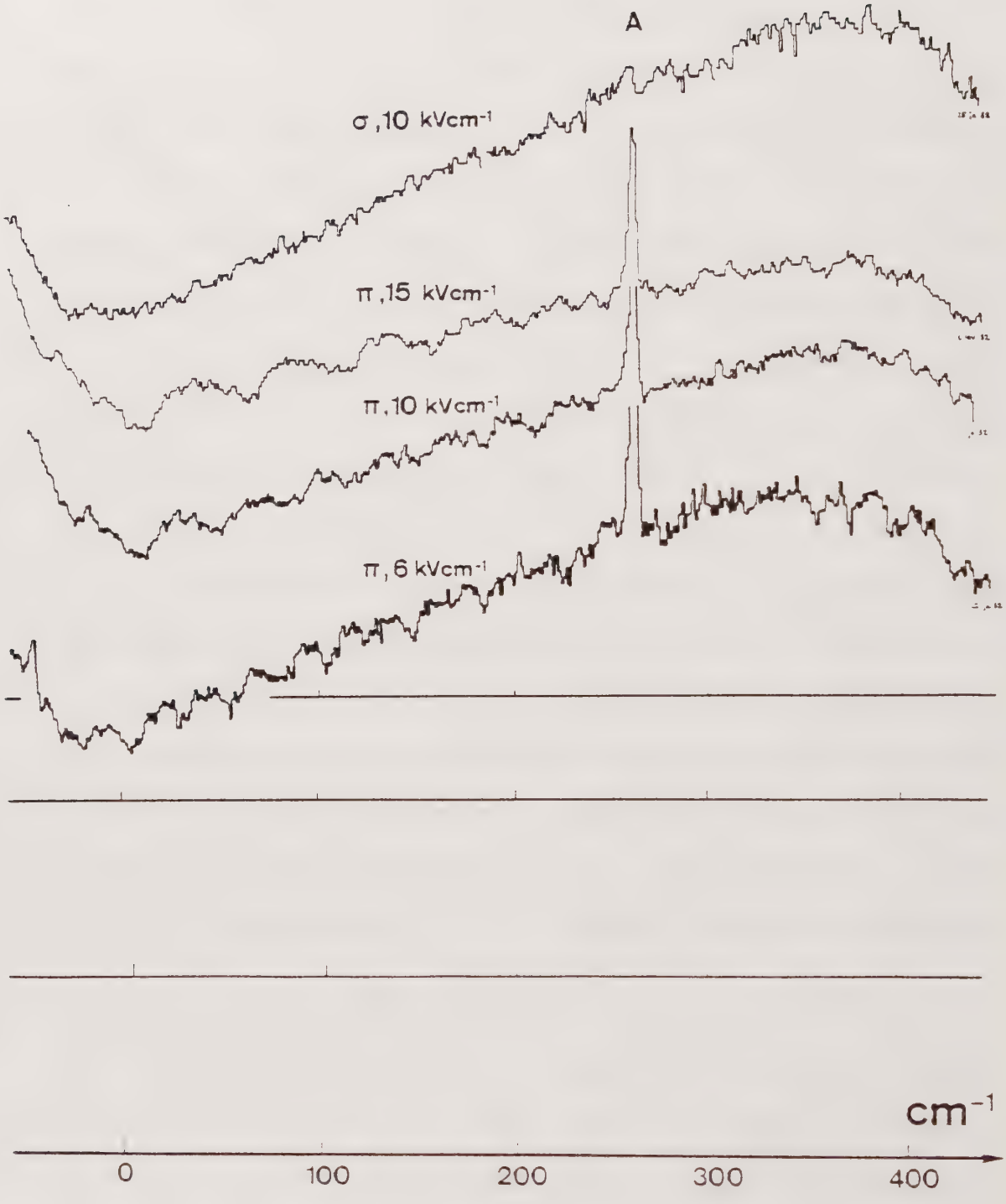


Figure III-2 : Modulation de la section efficace de photoionisation à partir de $^1S_0$, au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, en fonction du champ appliqué et de la polarisation.

III.2.1 Photoionisation à partir du niveau $^1S_0$.

III.2.1.a) Polarisations.

En choisissant un niveau $^1S_0$ comme niveau de départ, on se place dans le cas le plus simple où l'excitation a lieu à partir d'un niveau non dégénéré : le moment cinétique total ; le moment cinétique orbital et le nombre quantique magnétique initiaux sont nuls. L'étude de la photoionisation à partir du niveau $6s7s\ ^1S_0$ plutôt qu'à partir du niveau fondamental $6s^2\ ^1S_0$ n'est imposée que par des considérations techniques, nous ne disposons pas de laser ultra-violet accordable capable de réaliser l'excitation directe de l'atome vers la limite d'ionisation en champ nul. Dans cette expérience d'excitation à trois étages, seule donc la polarisation du laser à longueur d'onde variable de troisième étage a une influence sur l'aspect des spectres de photoionisation. Cette polarisation peut être π ou σ , comme nous l'avons expliqué au Chapitre II , et nos résultats expérimentaux confirment entièrement les résultats obtenus dans la photoionisation des alcalins à partir de leur état fondamental [14] (doublet , mais également s). A 10 $kVcm^{-1}$, au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, on n'observe de modulation de la section efficace qu'en polarisation π , ce qu'illustre la Figure III-2.

III.2.1.b) Taux de modulation.

La même figure montre la modulation de la section efficace de photo-ionisation π à différentes valeurs du champ électrique. Le taux de modulation $\left(\frac{I_M - I_m}{I_M + I_m}\right)$ est une fonction lentement croissante de l'intensité du champ de sorte que la modulation disparaît dans le bruit en champ faible ; nous avons pu l'observer jusqu'à 1,5 $kVcm^{-1}$, mais à cette valeur il est déjà difficile d'en mesurer la période. Le Tableau III-a rassemble les résultats de nos mesures du taux de modulation au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul ; nous estimons l'incertitude absolue de ces mesures à 1%, qui correspond au rapport bruit sur signal des

Tableau III-a

Champ électrique ($kVcm^{-1}$)	Taux de modulation (% ± 1% abs.)
1,5	3,7
2	3,3
3	3,4
6	4,1
8	5,2
10	4,8
15	4,4

enregistrements. Cette incertitude, importante en valeur relative puisque les taux mesurés sont de l'ordre de 4%, ne permet pas de préciser la loi expérimentale de variation du taux de modulation en fonction du champ appliqué, tout au plus vérifie-t-on que ce taux est fonction croissante de F .

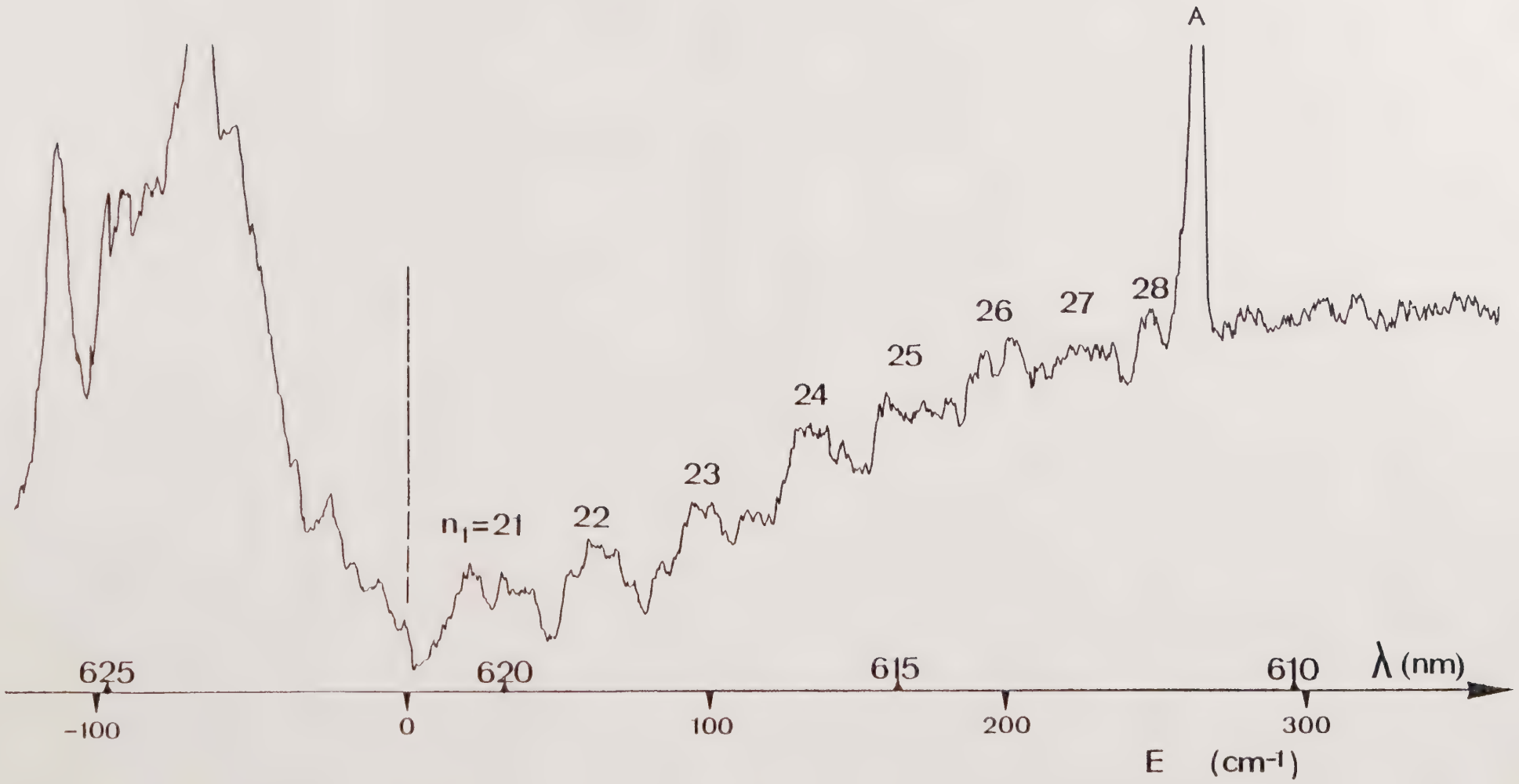


Figure III-3

Modulation de la section efficace de photoionisation " du niveau $^1S_0$ en champ électrique de 10 kVcm^{-1}, au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. Identification des résonances successives en fonction du nombre quantique parabolique n_1 .

III.2.1.c) Période de modulation.

Les mesures de la période de modulation au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul peuvent être beaucoup plus précises et constituent un résultat essentiel. En toute rigueur, le terme de "période" est d'ailleurs impropre à désigner l'intervalle de deux résonances successives dans la modulation ; nous avons vu au chapitre théorique que chacune de ces résonances correspond au maximum d'une section efficace de photoionisation partielle en n_1 (nombre quantique parabolique, dans l'hydrogène), de sorte que les résonances de modulation peuvent être désignées par valeurs successives de n_1, comme le montre la Figure III-3 sur un enregistrement amplifié du spectre de photoionisation π en champ de 10 $kVcm^{-1}$. Nous noterons l'intervalle de deux résonances successives $\frac{dE}{dn_1}$, il est fonction décroissante de n_1, ou de l'énergie ; nous l'avons mesuré au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul et étudié ses variations en fonction du champ électrique appliqué.

Dépouillement.

Les modèles théoriques indiquent que $\frac{dE}{dn_1}$ varie comme $F^{3/4}$ à la limite d'ionisation en champ nul $E=0$. Pour pouvoir comparer utilement les données de l'expérience à cette loi théorique, il faut mesurer la même quantité. Nous mesurons d'abord la position des minimums de modulation au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul. La période $\frac{dE}{dn_1}(0)$ peut être estimée par la moyenne de trois ou quatre intervalles successifs entre ces minimums (pour réduire l'incertitude de pointé des minimums). Mais comme les minimums se resserrent sensiblement en quelques intervalles, cette moyenne qui porte sur des intervalles situés

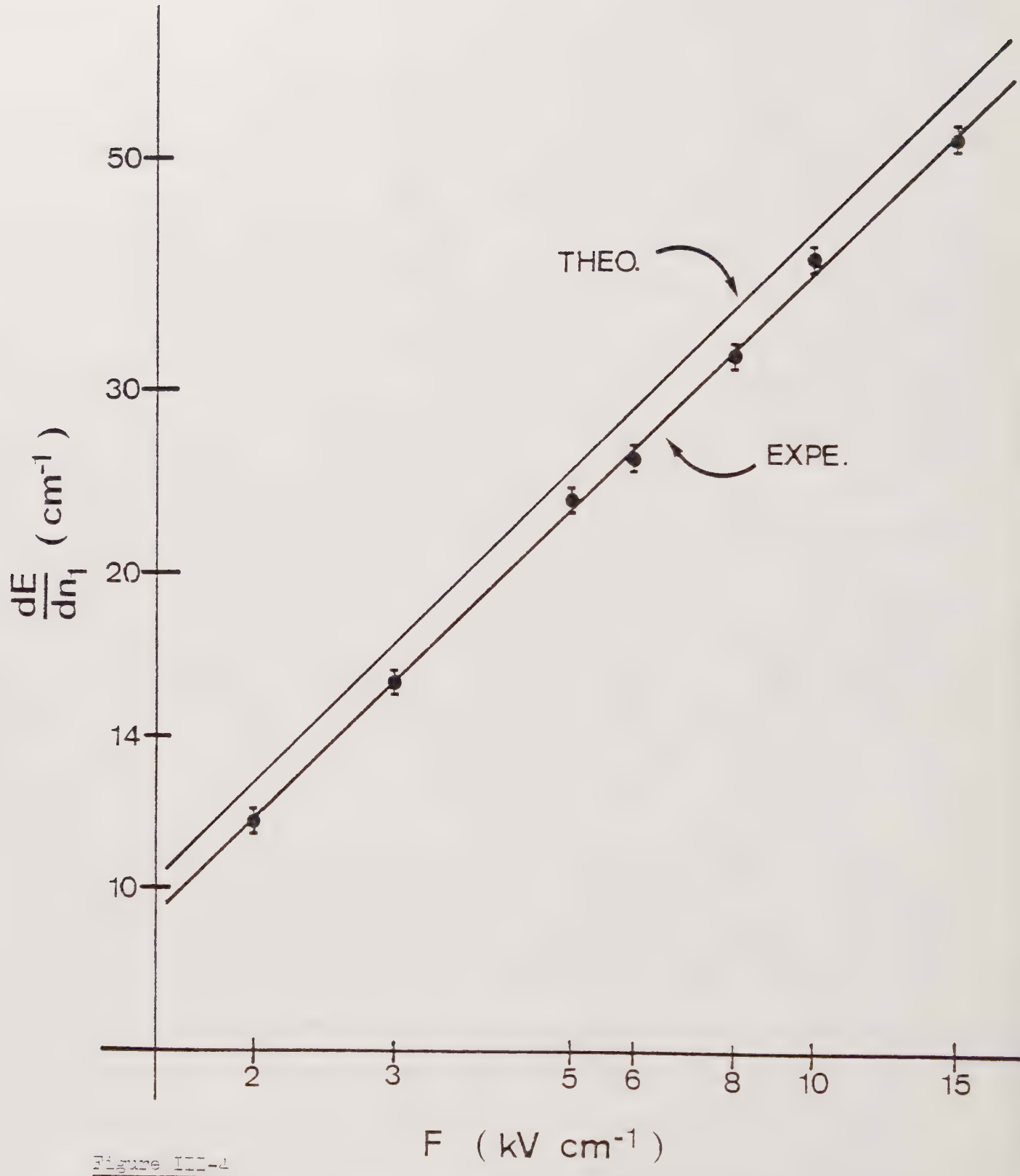


Figure III-4

Période de modulation de la section efficace de photoionisation à la limite d'ionisation en champ nul, en fonction du champ appliqué diagramme logarithmique). La droite expérimentale (ytterbium) et la droite théorique (hydrogène, sont bien parallèles (pente 3,1), mais irréductiblement décalées de 8% (en ordonnée .

pour la plupart au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul conduit à une sous-estimation de la période $\frac{dE}{dn_1}$ en $E=0$. La méthode la plus simple, pour corriger cette erreur, consiste à ajuster à la position des minimums en fonction de n_1 non plus une interpolation linéaire, dont la pente constante représente la quantité cherchée, mais une loi quadratique dont la pente décroît linéairement en fonction de n_1. La valeur de cette pente en $E=0$ donne une estimation correcte de $\frac{dE}{dn_1}(0)$. Les valeurs numériques obtenues sont rassemblées et comparées aux valeurs théoriques dans le Tableau III-b. L'incertitude relative sur les valeurs expérimentales est de 4%. La Figure III-4 illustre ces résultats par un diagramme logarithmique ; la pente de la droite

Champ électrique ($kVcm^{-1}$)	$\frac{dE}{dn_1}$ expérimental (cm^{-1})	$\frac{dE}{dn_1}$ théorique (cm^{-1})
1,5	8,0	10,2
2	11,6	12,6
3	15,8	17,1
5	23,7	25,1
6	25,4	28,7
8	32,1	35,7
10	39,8	42,2
15	51,5	57,2

Tableau III-b

expérimentale ajustée par la méthode des moindres carrés a une valeur de 0,743 , et, en restant à l'intérieur des barres d'incertitude, on peut aussi ajuster une droite de pente exactement égale à 0,75 : la période $\frac{dE}{dn_1}$ varie expérimentalement comme le prévoit la théorie proportionnellement à $F^{3/4}$. Mais la période mesurée est toujours plus petite que la période calculée : numériquement, les lois expérimentale et théorique peuvent être décrites par une équation de la forme $\frac{dE}{dn_1}(E_0) = \alpha F^{3/4}$, dans laquelle la valeur théorique de α est $7,5\ cm^{-1}/(kVcm^{-1})^{3/4}$, tandis que sa valeur expérimentale est $6,9\ cm^{-1}/(kVcm^{-1})^{3/4}$.

La période de modulation de la section efficace de photoionisation de l'ytterbium en champ électrique est donc 8% plus petite que la période calculée pour l'hydrogène. Cette différence importante n'apparaissait pas dans le rubidium, pour lequel la période de modulation à la limite d'ionisation en champ nul suivait exactement la loi théorique [14] . Peut être cet effet est-il dû au fait que l'atome d'ytterbium est un atome à plusieurs électrons optiques, contrairement à l'atome de rubidium qui n'en possède qu'un et dont le coeur est à symétrie sphérique.

III.2.2 Photoionisation à partir du niveau $^3S_1$.

Le niveau $^3S_1$ admet trois valeurs du nombre quantique magnétique total M_J , -1, 0 et +1 . Cependant les modèles théoriques développés au Chapitre I ne prennent en compte que la valeur du nombre quantique magnétique orbital $m_\ell = m$ de l'électron extérieur, au niveau de départ

et au niveau d'arrivée. Au niveau $6s7s\ ^3S_1$, celui-ci est toujours nul, comme au niveau $6s7s\ ^1S_0$. On s'attend donc à retrouver pour la modulation de la section efficace de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul la même règle de sélection à partir de $^3S_1$ qu'à partir de $^1S_0$. Cette hypothèse est vérifiée par l'expérience et les spectres de photoionisation en champ électrique à partir du niveau $^3S_1$ se rangent en deux classes : spectres de photoionisation pour une polarisation π du dernier étage et spectres de photoionisation pour une polarisation σ du dernier étage, la modulation n'apparaissant que sur les premiers. A l'intérieur de chaque classe on n'observe aucune différence significative lorsqu'on fait varier les polarisations des étages fixes de l'excitation. La valeur M_s du moment cinétique de spin du niveau $^3S_1$ est donc sans influence sur la photoionisation. Ceci justifie expérimentalement le choix fait dans l'exposé théorique de ne considérer que le moment cinétique orbital de l'électron excité en négligeant tout effet relativiste.

Ainsi le spectre de photoionisation via $^3S_1$ présenté à la Figure III-1-b peut-il être désigné simplement comme le spectre de photoionisation π à partir du niveau $^3S_1$, c'est le même quelles que soient les polarisations des étages inférieurs.

III.2.3 Photoionisation à partir du niveau $^1P^o_1$.

La photoionisation via un niveau P permet de réaliser l'excitation finale à partir de différents états de nombre quantique magnétique orbital : $m = 0$ si le premier étage est polarisé π , $m = \pm 1$ si le premier étage est polarisé σ . Naturellement les caractéristiques du spectre de photoionisation dépendent encore de la polarisation de l'étage à longueur d'onde variable, il faut donc étudier quatre configurations de polarisation : $\pi\pi$, $\pi\sigma$, $\sigma\pi$ et $\sigma\sigma$, cette dernière comprenant les deux cas $\sigma\sigma_{\parallel}$ et $\sigma\sigma_{\perp}$, comme nous l'avons indiqué au paragraphe II.2.1.

Dans les spectres enregistrés en champ de 10 $kVcm^{-1}$, la modulation n'apparaît qu'en $\pi\pi$, le taux de modulation étant alors de 5% . Ce résultat est en accord avec les calculs sur l'hydrogène (état final $m = 0$) [29] qui prévoient à 77 $kVcm^{-1}$ un taux de modulation de 22% en $\pi\pi$, 6% en $\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$ (état final $m = 0$), 2% en $\pi\sigma$ (état final $|m| = 1$) et 0% en $\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}$ (état final $|m| = 2$) : $\pi\pi$ est la configuration de polarisation qui produit de loin la plus importante modulation. Dans notre expérience, la configuration $\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$, qui arrive théoriquement deuxième pour l'importance du taux de modulation, est mélangée par l'utilisation de polarisations rectilignes, avec la configuration $\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}$ qui ne donne pas de modulation.

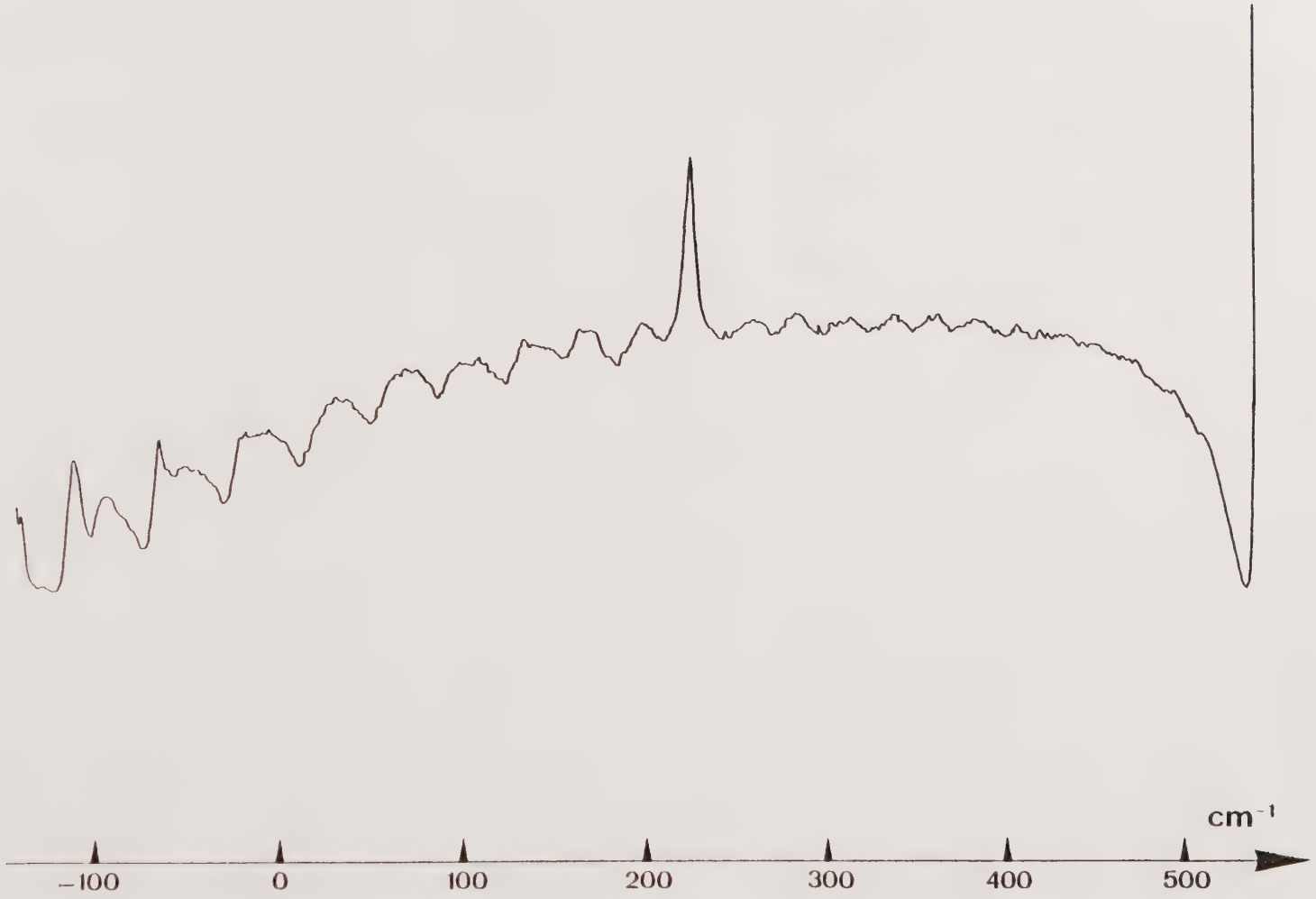


Figure III-5

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 $kVcm^{-1}$ du niveau $^1P_1^o$, en polarisations $\pi\pi$.

L'expérience de photoionisation via $^1P_1^o$ est celle qui nous a permis d'observer la modulation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul avec le meilleur rapport signal sur bruit ; en effet elle ne met en jeu qu'une excitation à deux étages avec deux lasers dont la synchronisation est parfaite. La Figure III-5 donne un spectre de photoionisation $\pi\pi$ en champ de 10 $kVcm^{-1}$ résultant de l'addition par l'analyseur multicanal de 110 balayages de la longueur d'onde du deuxième étage. La décroissance du signal du côté de basse énergie n'y est due qu'à la perte d'efficacité du colorant utilisé (PBBO). On y voit en dessous de la limite d'ionisation en champ nul comment le spectre des pics Stark autoionisés se transforme en un spectre de résonances larges formant modulation : dans la région intermédiaire les pics de $Z_1 \simeq 1$ se superposent aux résonances larges, sur leur flanc de basse énergie. Les pics disparaissent lorsqu'on atteint la limite d'ionisation en champ nul et la modulation devient rapidement (autant que le bruit permette d'en juger) symétrique. Dans cette région les spectres de photoionisation calculés pour l'hydrogène présentent les mêmes traits caractéristiques : dans la section efficace totale $m = 0$ représentée à la Figure I-9 un dernier pic de photoionisation, au-dessous de la limite d'ionisation en champ nul, est accolé à la première résonance de la modulation.

Sur le spectre de la Figure III-5 on observe la modulation jusqu'à plus de 300 cm^{-1} au-dessus de la limite d'ionisation, c'est-à-dire sur une douzaine de résonances. Pour préciser la façon dont l'intervalle entre minimums décroît lorsqu'on s'élève en énergie, nous avons porté sur la Figure III-6 sa valeur expérimentale en fonction du nombre

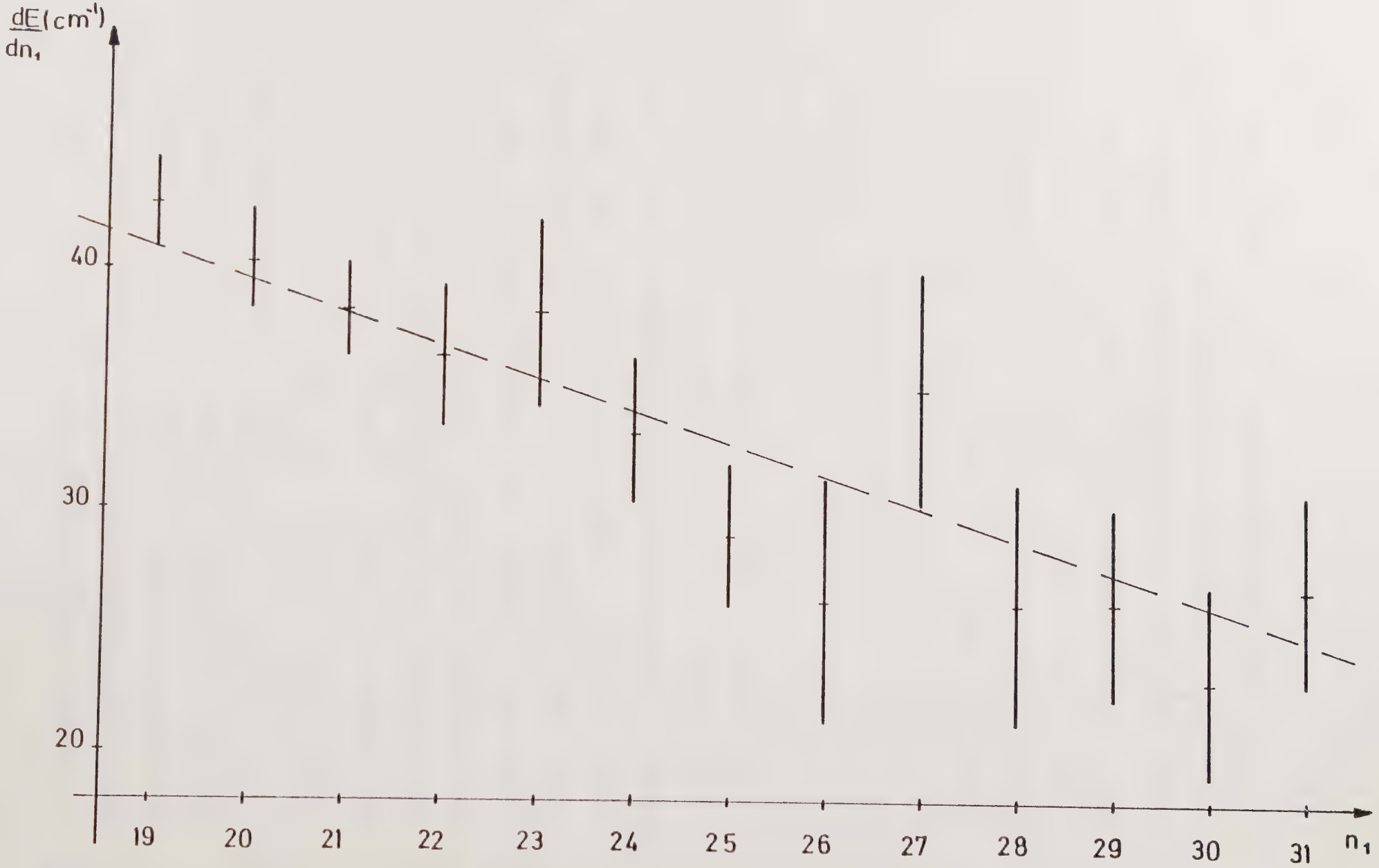


Figure III-6 : Intervalle entre minimums successifs de modulation, en fonction du nombre quantique parabolique n_1 , dans le spectre de la Figure III-5.

quantique parabolique n_1 qu'on peut attribuer à chaque résonance dans le modèle hydrogénoïde. Etant donnée la précision des mesures, une fonction linéaire décrit bien la décroissance observée de l'intervalle $\frac{dE}{dn_1}$, fonction de n_1, comme le supposait la méthode d'interpolation que nous avons utilisée pour calculer exactement $\frac{dE}{dn_1}$ à la limite d'ionisation en champ nul (III.2.1.b).

Le taux de modulation est également une fonction décroissante de l'énergie ; nous l'avons calculé pour l'enregistrement de la Figure III-5 au niveau de chaque résonance en mesurant le signal aux minimums et aux maximums de modulation : si m_i et m_{i+1} sont les hauteurs de deux minimums successifs, M_i la hauteur du maximum intermédiaire, nous prenons comme taux de modulation le rapport

$$T_i = \frac{M_i - \frac{m_i + m_{i+1}}{2}}{M_i + \frac{m_i + m_{i+1}}{2}} \quad .$$

Les valeurs expérimentales de T_i en fonction de l'énergie où est mesuré le minimum m_i sont rassemblées sur le graphique logarithmique de la Figure III-7, où on constate que les points correspondants sont alignés dans la limite des incertitudes expérimentales, c'est-à-dire que T_i peut être représenté par une fonction exponentiellement décroissante de l'énergie E, de la forme $\alpha\, e^{-\frac{E}{\zeta}}$. Pour le spectre de photoionisation $\pi\pi$ à 10 kVcm^{-1} on obtient une valeur de ζ approximativement égale à 256 cm^{-1}, la théorie, qui prévoit que la profondeur de modulation décroît "roughly" comme $e^{-\frac{3E}{|E_c|}}$ [29] (à 10 kVcm^{-1}, $\frac{1}{3}|E_c| = 204$ cm^{-1}), est donc vérifiée.

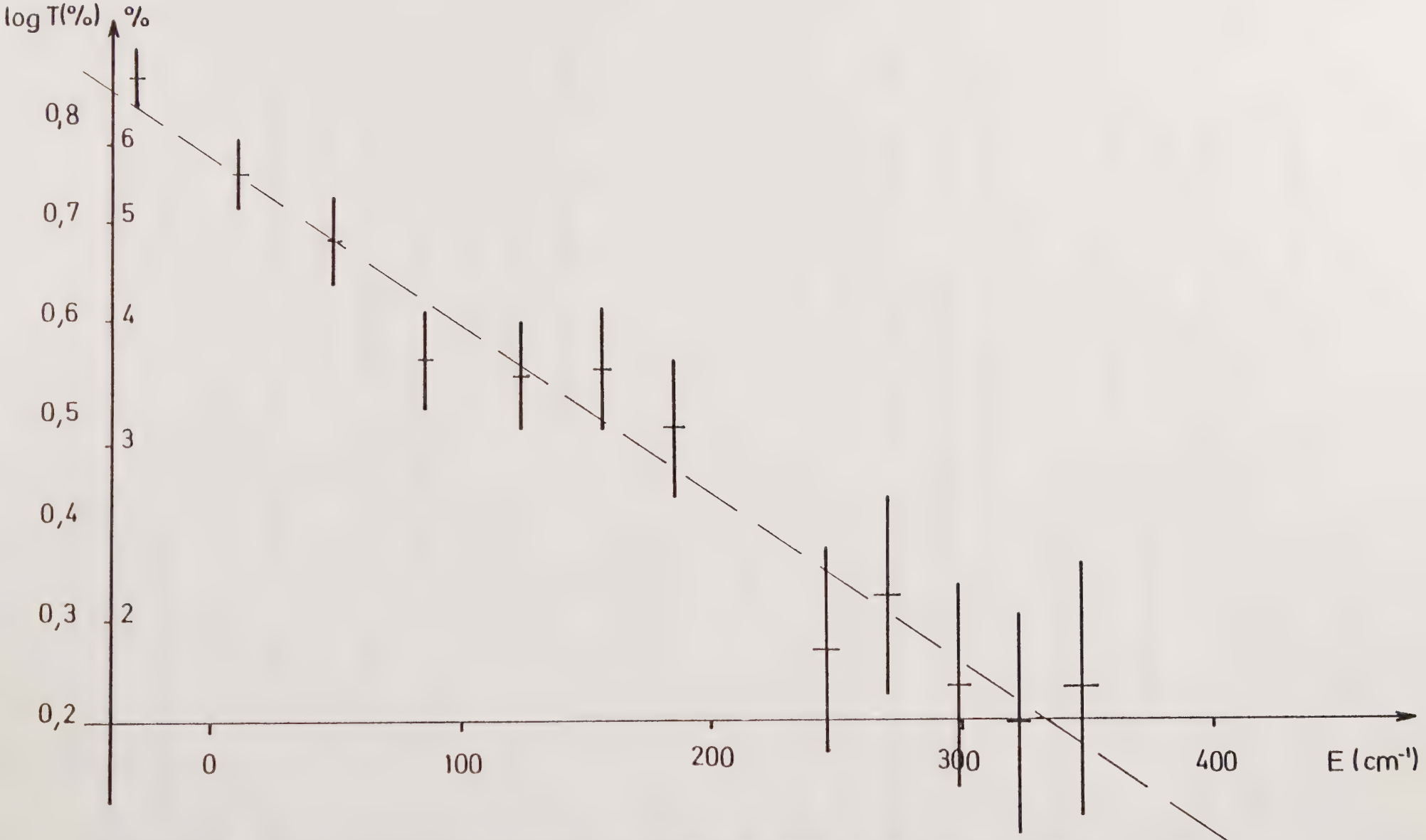


Figure III-7 : Taux de modulation en fonction de l'énergie au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul (diagramme semi-logarithmique), dans le spectre de la Figure III-5. La droite expérimentale tracée correspond à une décroissance en $\exp\left(-\frac{E}{256\ cm^{-1}}\right)$.

III.2.4 Photoionisation à partir du niveau $^1D_2$.

Nos expériences de photoionisation à partir des niveaux S et P n'innovent que par l'élément étudié puisque des expériences de photoionisation en champ électrique à un et deux étages ont déjà été effectuées sur les alcalins et le baryum [11,14,15]. A notre connaissance l'expérience de photoionisation à partir du niveau $5d6s\ ^1D_2$ de l'ytterbium est la première expérience de photoionisation en champ électrique d'un atome à partir d'un niveau D , elle apporte des résultats nouveaux dans un cas où d'ailleurs aucun calcul quantitatif n'a encore été effectué. Ces résultats sont partiels : l'utilisation de trois lasers pompés indépendamment par chacun des trois étages de l'excitation a pour conséquence dans les enregistrements un rapport signal sur bruit faible, qui rend très imprécise la mesure des caractéristiques de la modulation. Nous n'avons pas étudié tous les cas de polarisation permis dans une expérience à trois étages avec nos polarisations σ rectilignes, nous n'avons étudié que les configurations $\pi\pi\pi$, $\pi\pi\sigma$, $\sigma\pi\pi$, $\pi\sigma\pi$, $\sigma\pi\sigma_{\parallel}$, $\pi\sigma\sigma_{\parallel}$, $\pi\sigma\sigma_{\perp}$, $\sigma\sigma\pi_{\perp}$ et $\sigma\sigma\sigma_{\text{I}}$, le symbole I dans ce dernier cas signifiant que la polarisation du deuxième étage est orthogonale aux polarisations du premier et du troisième étages. Seul un calcul numérique (dans le modèle hydrogénoïde) permettrait d'évaluer le taux de modulation dans chaque configuration de polarisation. Cependant quelques critères simples permettent de prévoir qualitativement l'importance de la modulation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, ces critères sont expliqués dans l'Appendice A.

Il en ressort pour la photoionisation via le niveau $^1D_2$ que les configurations de polarisation peuvent être classées suivant le taux de modulation qu'elles produisent en cinq groupes, l'importance de la modulation ne dépendant principalement que de la valeur de $|m|$ atteinte dans le continuum. Les cinq groupes sont présentés dans le Tableau III-c

configurations de polarisations théoriques	valeur de $\|m\|$ finale	configurations de polarisations expérimentales	taux de modulation observé
$\pi\pi\pi$	0	$\pi\pi\pi$	5%
$\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\pi$			
$\pi\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$	0	$(\pi\sigma\sigma_{\parallel})$	faible
$\sigma^{\pm}\pi\sigma^{\mp}$		$(\sigma\pi\sigma_{\parallel})$	6%
$\pi\pi\sigma^{\pm}$	1	$\pi\pi\sigma$	4%
$\pi\sigma^{\pm}\pi$		$\pi\sigma\pi$	(modulation invisible
$\sigma^{\pm}\pi\pi$		$\sigma\pi\pi$	3%
$\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\sigma$			
$\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$		$(\sigma\sigma\sigma_{\mp})$	faible
$\pi\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}$	2	$(\pi\sigma\sigma_{\perp})$	(modulation invisible
$\sigma^{\pm}\pi\sigma^{\pm}$			
$\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}\pi$		$(\sigma\sigma\pi_{\perp})$	4%
$\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}$	3		

TABLEAU III-c

Comparaison des taux de modulation obtenus dans l'expérience de photoionisation à partir du niveau $^1D_2$ au classement des configurations de polarisations prévus dans l'hydrogène

par ordre de taux décroissant, avec les résultats obtenus dans l'expérience. Dans les cas où la configuration de polarisation utilisée ne

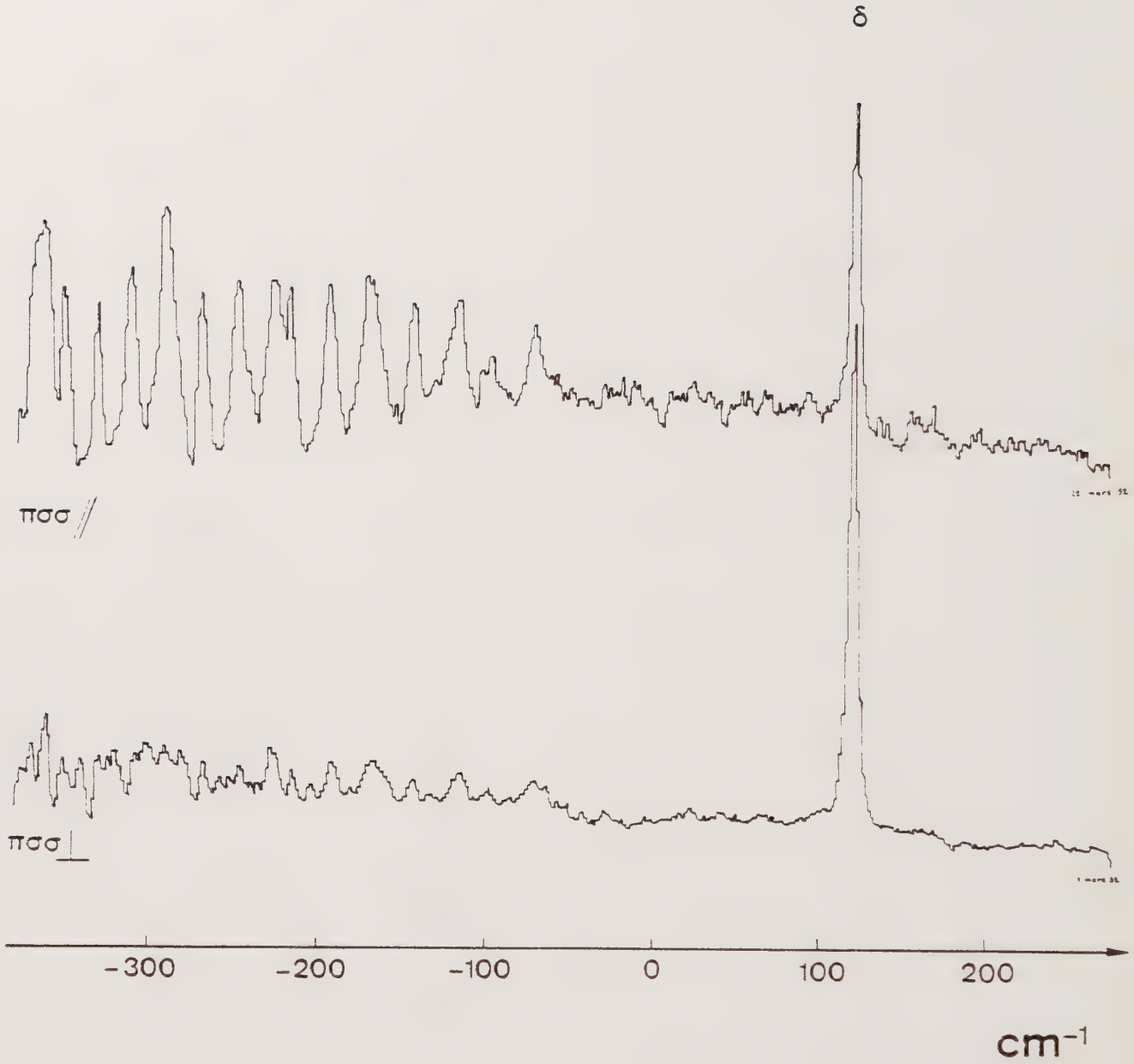


Figure III-8

Mise en évidence de l'interférence destructive de la transition vers un état final de m=0 dans la photoionisation πσσ via $^1D_2$. Champ électrique de 10 kV/cm^{-1}.

s'identifie pas à une configuration théorique (c'est-à-dire dès que plus d'un étage a la polarisation σ) nous l'avons écrite entre parenthèses et placée en face de la configuration théorique à laquelle elle s'apparente le mieux.

Lorsque au moins deux étages ont la polarisation σ , un état $m = 0$ peut être atteint par plusieurs voies susceptibles d'interférer. Si cette interférence est destructive il peut se trouver que la configuration de polarisation utilisée est encore équivalente à une configuration théorique, de polarisations circulaires pures. Dans ce cas la configuration expérimentale, entre parenthèses dans le Tableau III-c, est soulignée. L'exemple le plus important de cette situation est donné par deux premiers étages de polarisation σ : si ces σ sont parallèles, on peuple bien les états $m = -2$, $m = 0$ et $m = 2$ du niveau $^1D_2$; mais si ces σ sont perpendiculaires, il y a interférence destructive entre les voies $\sigma_+\sigma_-$ et $\sigma_-\sigma_+$ et on peuple seulement les états de $|m| = 2$. $\sigma\sigma_\perp$ équivaut à $\sigma_\pm\sigma_\pm$. Le calcul détaillé de cette interférence et de celles qui apparaissent dans les configurations de polarisations expérimentées est donné dans l'Appendice B ; il permet aussi d'expliquer la différence observée entre les spectres de photoionisation $\pi\sigma\sigma_\parallel$ et $\pi\sigma\sigma_\perp$ (Figure III-8). Dans les deux cas l'état atteint dans le continuum peut être écrit comme combinaison linéaire d'états propres $|\gamma SLJM\rangle$ du moment cinétique, et le calcul donne ceux de ces états vers lesquels les règles de sélection permettent la transition, c'est-à-dire les composantes de l'état final qui contribuent à la section efficace de photoionisation.

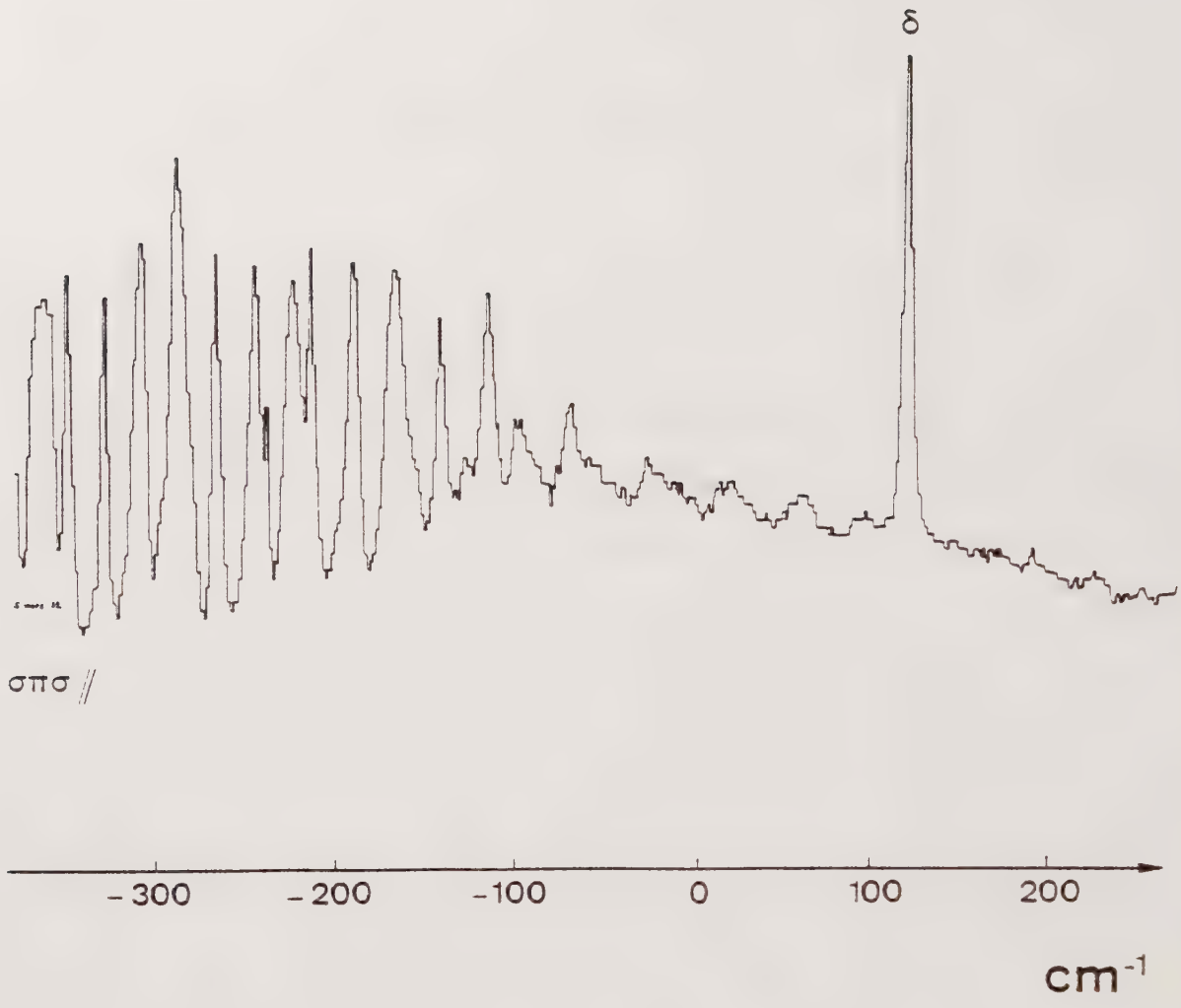


Figure III-9

Spectre de photoionisation en champ électrique de 10 kVcm^{-1} du niveau $^1D_2$.

Polarisations $\sigma\pi\sigma_{//}$.

Dans le cas de la configuration $\pi\sigma\sigma_{\parallel}$ la section efficace de photoionisation vers un état de $m = 0$ reçoit une contribution des composantes $|\gamma SL10\rangle$ et $|\gamma SL30\rangle$ de l'état final, tandis que dans la configuration $\pi\sigma\sigma_{\perp}$ la seule contribution possible est celle de ses composantes $|\gamma SL20\rangle$.

L'opérateur de transition dipolaire électrique n'agissant pas sur le spin et le dernier niveau relais étant pratiquement un pur singulet, seules les composantes $|\gamma 0220\rangle$ (de spin nul) de l'état final sont utiles à la transition et, le niveau relais ayant la configuration $4f^{14}5d6s$, en dehors des résonances $4f^{14}5dn\ell$ ou $4f^{13}5d6sn\ell$, seule contribuera finalement à la transition vers le continuum $m = 0$ la composante de l'état final $4f^{14}6snd\ {}^1D_2$. Or la règle de sélection de parité interdit précisément la transition vers un état de telle configuration ; il en résulte que les seuls états du continuum excités dans la configuration $\pi\sigma\sigma_{\perp}$ sont des états de $|m| = 2$. $\pi\sigma\sigma_{\perp}$ est équivalent à $\pi\sigma_{\pm}\sigma_{\pm}$. Le spectre de photoionisation correspondant est beaucoup plus plat que le spectre de photoionisation $\pi\sigma\sigma_{\parallel}$, dans lequel on atteint effectivement $m = 0$.

La modulation n'est notable que dans les configurations de polarisation $\pi\pi\pi$ et $\sigma\pi\sigma_{\parallel}$ (les spectres obtenus sont donnés par les figures III-1 et III-9), encore ne reste-t-elle visible que sur trois périodes au-delà de la limite d'ionisation en champ nul, ce qui empêche d'étudier la décroissance de son taux et de l'intervalle $\frac{dE}{dn_1}$ comme nous l'avons fait dans l'expérience de photoionisation à partir de ${}^1P^o_1$. Par la méthode suivie pour le dépouillement des spectres de photoionisation à partir de ${}^1S_0$ on obtient dans les deux configurations une valeur de

$\frac{dE}{dn_1}(0)$ égale à 40,4 cm^{-1}, compatible à 4% près avec les 39,8 cm^{-1} obtenus précédemment.

Les résultats obtenus dans l'étude de la modulation de la section efficace de photoionisation à partir de $^1D_2$ au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul restent donc très qualitatifs ; le plus important est l'observation de cette modulation, avec le taux le plus élevé de toutes nos expériences, dans une configuration où la lumière photoionisante a la polarisation σ . Cette étude mériterait d'être poursuivie avec un dispositif expérimental perfectionné, permettant en particulier d'éclairer le jet atomique dans la direction du champ électrique pour obtenir des polarisations circulaires pures. Un laser à centre coloré par exemple pourrait aussi remplacer avantageusement l'oscillateur paramétrique et fournir une excitation stable du deuxième étage.

III. 3 Structure du spectre de photoionisation au-dessous de la limite d'ionisation en champ nul.

III.3.1 Subsistance de niveaux Stark quasi-liés.

La Figure III-1 montre dans chaque expérience le spectre de pics larges observé en dessous de la limite d'ionisation en champ nul. Ces pics peuvent être interprétés simplement à partir de la structure de l'atome d'hydrogène : ils correspondent aux sous-niveaux Stark les plus

stables (c'est-à-dire les plus hauts en énergie) de chaque éventail issu d'un niveau de nombre quantique principal n donné. Dans l'hydrogène ils apparaitraient comme des pics étroits et les sous-niveaux de bas nombre quantique principal et de n_1 maximum, s'ionisant très lentement, ne seraient même pas détectés. Dans un atome non hydrogénoïde, la présence d'un coeur électronique brise la symétrie liée à la séparabilité du mouvement de l'électron extérieur en coordonnées paraboliques et mélange les niveaux de différents nombres quantiques paraboliques n_1 . Les états stables sont donc couplés au continuum des états ionisés, ce qui les fait apparaître comme des pics larges, et symétriques dans le cas de l'ytterbium, comme nous l'avons déjà remarqué.

III.3.2 Positions des pics de photoionisation.

Nous avons mesuré les positions de ces pics sur tous les spectres de photoionisation enregistrés en dessous de la limite d'ionisation en champ nul et nous les avons comparés aux énergies des sous-niveaux Stark de l'atome d'hydrogène. Le calcul numérique exact de ces énergies est long et ne se justifie que pour des niveaux très proches de la limite d'ionisation en champ nul. Dans la plus grande partie de la région située entre le seuil classique d'ionisation et cette limite, un calcul perturbatif suffit largement et nous avons établi la position des niveaux de l'atome d'hydrogène par la formule donnée au paragraphe I.2.2.c), au quatrième ordre de perturbation en F . Le Tableau III-d rassemble les positions mesurées sur les enregistrements de la Figure III-1 et l'énergie des niveaux $m = 0$ de l'atome d'hydrogène pour les valeurs les plus élevées du nombre quantique parabolique n_1 . Nous avons pour chaque

Champ électrique : 10 kVcm^{-1}

Niveaux théoriques de H		Niveau de Départ						
		$^1S_0$		$^3S_1$		$^1P^o_1$	$^1D_2$	
Energie	(n,n_1)	Polarisation						
		π	π	$\pi\pi\pi$	$\pi\pi\pi$	$\pi\pi$	$\pi\pi\pi$	$\pi\pi\pi$
-118,5	(19,18)	-112,4		-117,9		-111,3	-114,8	
-145,3	(19,17)	-138,0		-145,0		-139,0	-141,9	
-165,3	(18,17)	-163,1		-169,7		-162,0	-165,7	
-190,1	(18,16)	-186,7		-195,1		-187,1	-189,9	
-215,0	(18,15)	-211,8				-212,8	-214,2	
-221,0	(17,16)	-222,0		-220,4		-220,8	-221,8	
-239,8	(18,14)	-237,2		-228,4			-240,4	
-244,1	(17,15)	-242,2		-246,6		-243,3	-245,0	
				-251,6				
-267,1	(17,14)	-264,9				-266,8	-267,1	-270,2
				-274,4				
-285,7	(16,15)	-285,1			-286,8	-285,5		
-290,1	(17,13)			-291,3	-291,5		-289,0	-293,5
-307,1	(16,14)	-305,0			-309,1		-307,0	-310,1
-313,0	(17,12)				-315,3		-312,8	
-328,5	(16,13)	-326,4	-331,2		-331,0	-328,4	-328,7	-332,1
					-338,0		-335,6	-340,7
-349,7	(16,12)	-347,5	-352,6		-352,4	-350,8	-349,9	-353,7
-360,7	(15,14)		-361,5		-362,0	-360,2	-357,8	-363,5
-371,0	(16,11)						-370,6	-374,4
-380,5	(15,13)		-383,0		-383,4	-378,2		-385,0
					-394,6			-396,9
-400,3	(15,12)		-403,3		-403,9	-400,8		-405,1
					-414,7	-406,1		
-420,0	(15,11)		-423,6		-424,2	-422,5		-426,6
-448,4	(14,13)				-447,8	-442,8		-448,2
-466,7	(14,12)				-470,1	-466,1		-471,4
-485,0	(14,11)		-490,5		-490,3	-487,0		-491,3
-503,2	(14,10)		-505,8		-507,5	-507,2		-510,8
-521,4	(14 , 9)		-519,0		-523,9	-527,6		-520,8
-539,6	(14 , 8)		-529,7		-539,6	-542,0		-539,2
			-545,7					
-552,8	(13,12)		-556,8			-561,1		-556,6
-569,7	(13,11)		-563,4		-562,5	-567,8		-563,2
			-577,5		-577,0	-578,2		-574,5
-586,5	(13,10)		-582,5			-587,5		-589,5
			-587,2					-594,6
-603,4	(13 , 9)		-595,9			-596,7		-605,9
			-604,4		-604,4	-607,8		-612,5
-620,2	(13 , 8)		-612,9		-612,1			
			-625,1		-628,9	-626,0		-626,6

Tableau III-d

valeur de n arrêté le calcul à la dernière valeur de n_1 pour laquelle le terme du quatrième ordre dans le développement perturbatif de l'énergie est inférieur en valeur absolue au terme du troisième ordre.

III.3.3 Identification des pics de photoionisation.

a) Dans la région d'énergie moyenne.

Entre -100 et -300 cm^{-1} on peut identifier facilement les pics observés qui ont un profil identique dans les quatre spectres. On reconnaît principalement les deux pics dont les positions théoriques sont -215 et -244 cm^{-1}, avec leurs voisins plus faibles à -221 et -240 cm^{-1}, on observe toujours un pic large à -286 cm^{-1}, un autre à -165 cm^{-1}, qui correspondent respectivement aux niveaux $(n,n_1) = (16,15)$ et $(n,n_1) = (18,17)$ de l'atome d'hydrogène, mais il serait sans doute hâtif de conclure sur ces seuls exemples que les têtes de série doivent engendrer des pics plus larges que les autres. En tout état de cause il est clair que dans la région d'énergie moyenne (-300 à -100 cm^{-1}) on n'observe dans les quatre cas qu'un seul et même spectre, le spectre des niveaux Stark autoionisés de $m=0$. Le choix de niveaux de départ de moment cinétique variant de 0 à 2 et de différentes parités n'en modifie pas l'aspect, et cela tient à l'absence de règle de sélection sur les nombres quantiques paraboliques dans les transitions dipolaires électriques.

b) Dans la région de basse énergie.

En revanche, dans la région de basse énergie, de -300 cm^{-1} au seuil classique d'ionisation, l'identification des pics est beaucoup moins sûre et les quatre spectres présentent des différences notables. Ceci est dû à la perturbation des spectres de photoionisation à partir d'états pairs (S et $^1D_2$) par un niveau doublement excité de l'atome situé à -523 cm^{-1} de la limite d'ionisation en champ nul. Cette perturbation est analysée au paragraphe III.4.2 .

III.3.4 Limites du calcul au quatrième ordre. Corrections.

Les énergies calculées au quatrième ordre de perturbation sont entachées d'une certaine erreur par rapport aux énergies exactes des niveaux Stark de l'atome d'hydrogène. A 10 $kVcm^{-1}$ cette erreur peut atteindre plusieurs cm^{-1} sur les niveaux les plus élevés lorsque le terme du quatrième ordre E_4 devient du même ordre de grandeur que le terme du troisième ordre E_3 . Comme lorsque $n_1 > n_2$ on a affaire à une série alternée (cf. I.2.2.c)), dans le cas extrême où termes du troisième et du quatrième ordres sont opposés, on a sans doute une meilleure estimation de l'énergie exacte en remplaçant, dans la somme, $E_3 + E_4$ par $E_3 + \frac{E_4}{2} = \frac{E_3}{2}$. L'approximation géométrique [43] permet de passer continûment de ce cas au cas le plus fréquent où E_4 est très petit par rapport à E_3 et où la somme $E_0 + E_1 + E_2 + E_3 + E_4$ donne le résultat cherché ; elle consiste à estimer le reste de la série comme celui d'une série géométrique de raison $\frac{E_4}{E_3}$ et à remplacer la somme des deux derniers termes, $E_3 + E_4$ par $\frac{E_3^2}{E_3 - E_4}$.

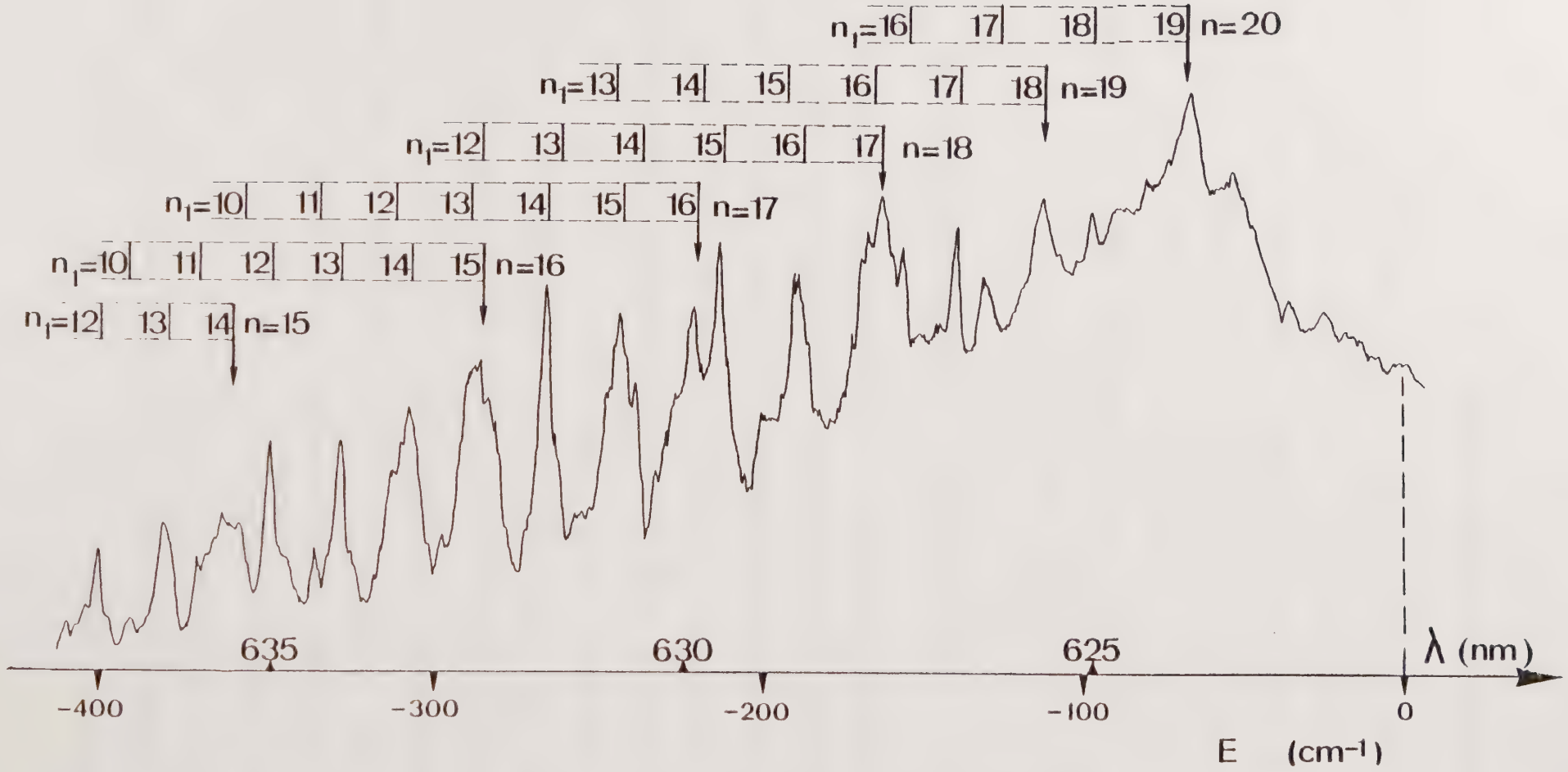


Figure III-10 : Identification des pics de photoionisation observés en dessous de la limite d'ionisation en champ nul aux niveaux Stark calculés dans l'atome d'hydrogène au quatrième ordre de perturbation en F , en fonction du nombre quantique principal n et du nombre quantique parabolique n_1 .
Spectre de photoionisation π en champ électrique de 10 $kVcm^{-1}$ du niveau $^1S_0$.

Cette approximation a donné de bons résultats dans d'autres problèmes de physique atomique : "même si les termes du développement perturbatif ne montrent un comportement géométrique que dans des cas exceptionnels, la règle de sommation géométrique conduit à une précision numérique remarquable dans un grand nombre de cas et dépasse les critères apparemment nécessaires à son applicabilité" [44].

La Figure III-10 reprend la partie centrale du spectre de photoionisation π à partir du niveau $^1S_0$ en lui adjoignant la position des niveaux Stark de l'atome d'hydrogène après correction par l'approximation géométrique. L'accord obtenu justifie cette approximation qui donne même une prévision semble-t-il correcte de la position du niveau (20,19) . La correction introduite par rapport à l'énergie du quatrième ordre brute, correction dont l'expression littérale est $\frac{E_4^2}{E_3 - E_4}$, varie peu avec le nombre quantique parabolique n_1 , elle vaut environ +0,5 cm^{-1} pour les niveaux de nombre quantique principal $n = 16$, +1,4 cm^{-1} pour les niveaux 17 , +3,5 cm^{-1} pour les niveaux 18 , +8 cm^{-1} pour les niveaux 19 et +19 cm^{-1} pour le niveau (20,19) .

III.3.5 Evolution des résonances avec le champ électrique et la polarisation.

L'identification des pics de photoionisation par le calcul des niveaux Stark hydrogénoïdes est également possible dans les spectres enregistrés en champ électrique inférieur à 10 $kVcm^{-1}$; lorsqu'on diminue l'intensité du champ les pics se resserrent et s'affinent, mais à 1 $kVcm^{-1}$ leur largeur observée (environ 2 cm^{-1}) n'est plus leur

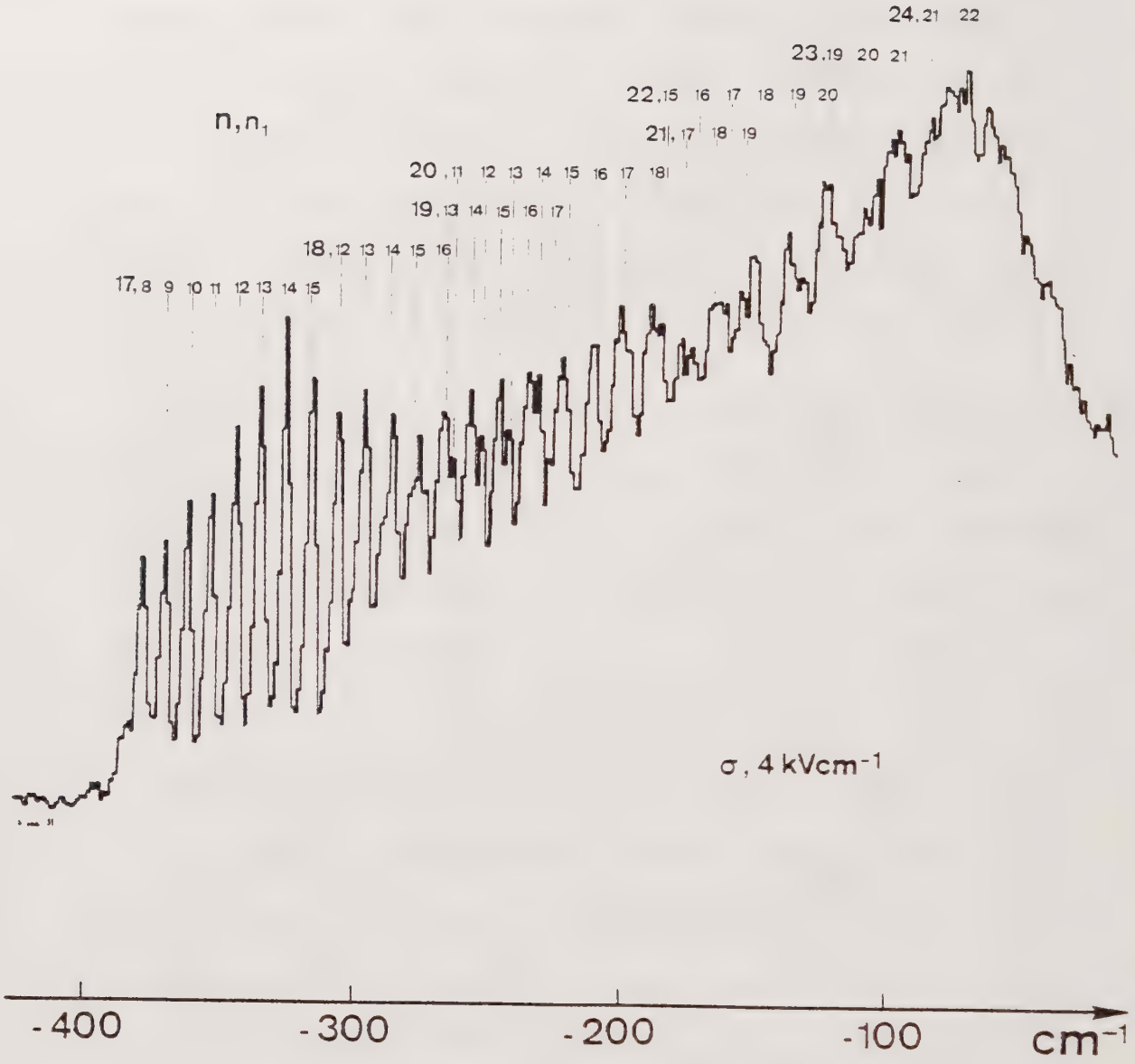


Figure III-11

Identification des pics de photoionisation observés en dessous de la limite d'ionisation en champ nul aux niveaux Stark calculés dans l'hydrogène au quatrième ordre de perturbation, en fonction du nombre quantique principal n et du nombre quantique parabolique n_1. Spectre de photoionisation σ en champ électrique de 4 kVcm^{-1} du niveau S_1.

largeur naturelle, elle est principalement due à la faible résolution instrumentale. Cette résolution est déterminée non seulement par la largeur spectrale du laser de longueur d'onde variable (0,5 cm^{-1}) mais aussi par le système d'acquisition : le signal enregistré est à chaque instant une moyenne du courant de photoionisation sur les dix coups précédents (voir paragraphe II.4.4) ; à la vitesse de balayage et au taux de répétition pratiqués (0,5 Å s^{-1} , 10 Hz) ce moyennage à lui seul limite la résolution à 1,3 cm^{-1}. D'autres facteurs contribuent encore à réduire la résolution instrumentale, par exemple la possibilité d'un léger décalage en longueur d'onde des balayages successifs produisant les spectres dont l'addition est faite par l'analyseur multicanal ; ces facteurs sont négligeables par rapport aux précédents.

L'identification des pics est encore possible dans les spectres de photoionisation vers des états de m non nul. En pratique les pics des niveaux de $|m|$ égal à 2 ou 3 sont cachés respectivement par les pics de niveaux de $|m|$ égal à 0 ou 1 dont les positions coïncident avec les leurs au premier ordre de perturbation en F (la valeur du nombre quantique magnétique n'intervient explicitement dans l'effet Stark qu'au deuxième ordre, voir paragraphe I.2.2.c)).

Le calcul de la position des niveaux Stark de l'hydrogène de $|m| = 1$ au quatrième ordre de perturbation, de la même façon que pour $|m| = 0$, permet une identification correcte des pics de photoionisation de $|m| = 1$ dans la région comprise entre -100 et -300 cm^{-1}. La Figure III-11 donne un exemple de telle identification sur le spectre de photoionisation σ du niveau $^1S_0$ en champ électrique permanent de 4 $kVcm^{-1}$,

d'aspect moins régulier que les spectres présentés jusqu'ici. On vérifie que dans la partie haute des spectres de photoionisation vers des états de nombre quantique magnétique 1 ou -1, en dessous de la limite d'ionisation en champ nul les pics de niveaux quasi liés disparaissent à plus basse énergie que dans les spectres de photoionisation vers $m=0$. Ce comportement prélude à celui des sections efficaces respectives au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul et peut être expliqué comme lui par un effet centrifuge.

En effet en $m=0$ les pics des niveaux quasi-liés correspondent - dans le modèle hydrogénoïde - à des fonctions d'onde électroniques à forte probabilité de présence le long de l'axe parallèle au champ électrique passant par le noyau, du côté d'énergie potentielle élevée (Z_1 voisin de 1). Pour $m \neq 0$ l'électron ne peut plus se trouver sur cet axe et, de la même façon qu'au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul (la force centrifuge tendait à ramasser les densités partielles d'états autour de la valeur $Z_1 = 0,5$, au-dessous elle déstabilise les niveaux de n_1 élevés.

On observe cependant dans certains spectres de photoionisation de $^1D_2$ vers $|m| = 1$ des pics qui ne correspondent pas aux niveaux $|m| = 1$ calculés par la formule perturbative. Par exemple, en champ de 10 $kVcm^{-1}$, les spectres $\pi\pi\sigma$ et $\sigma\pi\pi$ montrent trois pics à -141, -165 et -189 cm^{-1} qui ne sont pas prévus par le calcul hydrogénoïde, qui ne donne, en $|m| = 1$, que les niveaux $(n,n_1) = (19,17)$ à $-131\ cm^{-1}$, $(19,16)$ à $-158\ cm^{-1}$, $(18,16)$ à $-177\ cm^{-1}$ et $(18,15)$ à $-202,5\ cm^{-1}$. D'autre part les positions des pics observés coïncident

remarquablement avec les positions théoriques des niveaux $m = 0$ $(n,n_1) = (19,17)$ à $-145\ cm^{-1}$ ($-136,9\ cm^{-1}$ après correction par l'approximation géométrique), $(18,17)$ à $-165\ cm^{-1}$ et $(18,16)$ à $-190\ cm^{-1}$. On peut faire des observations similaires à $5\ kVcm^{-1}$.

Cette anomalie n'apparaît pas dans les spectres de photoionisation σ de $^3S_1$, où les seuls pics observés à $10\ kVcm^{-1}$ dans la région s'identifient bien aux sous-niveaux $(n,n_1) = (19,16)$, $(18,16)$ et $(18,15)$ des sous-espaces $|m| = 1$.

L'apparition de structures du spectre de photoionisation vers $m = 0$ dans les spectres de photoionisation $\pi\pi\sigma$ et $\sigma\pi\pi$ via $^1D_2$ pourrait être prcvoquée par un mélange de m dans les niveaux intermédiaires, et on pense par exemple à un défaut de compensation du champ magnétique terrestre. Mais dans cette hypothèse les pics de $|m| = 1$ ne viendraient que s'ajouter au spectre des pics de $m = 0$, et pas s'y substituer comme on l'observe dans les spectres cités.

III.3.6 Comparaison générale expérience - théorie de la position en énergie des résonances Stark.

Les Figures III-12a et b rassemblent nos données expérimentales sur la position des niveaux quasi-liés de l'atome d'ytterbium dans les continuums $m = 0$ et $m = 1$. Nous leur avons superposé le diagramme des niveaux Stark de l'atome d'hydrogène de nombre quantique parabolique n_1 élevé, d'énergie calculée au quatrième ordre de perturbation en F ; le tracé est interrompu aux alentours de la valeur du champ électrique qui rend le terme du quatrième ordre plus grand en valeur absolue que le terme du

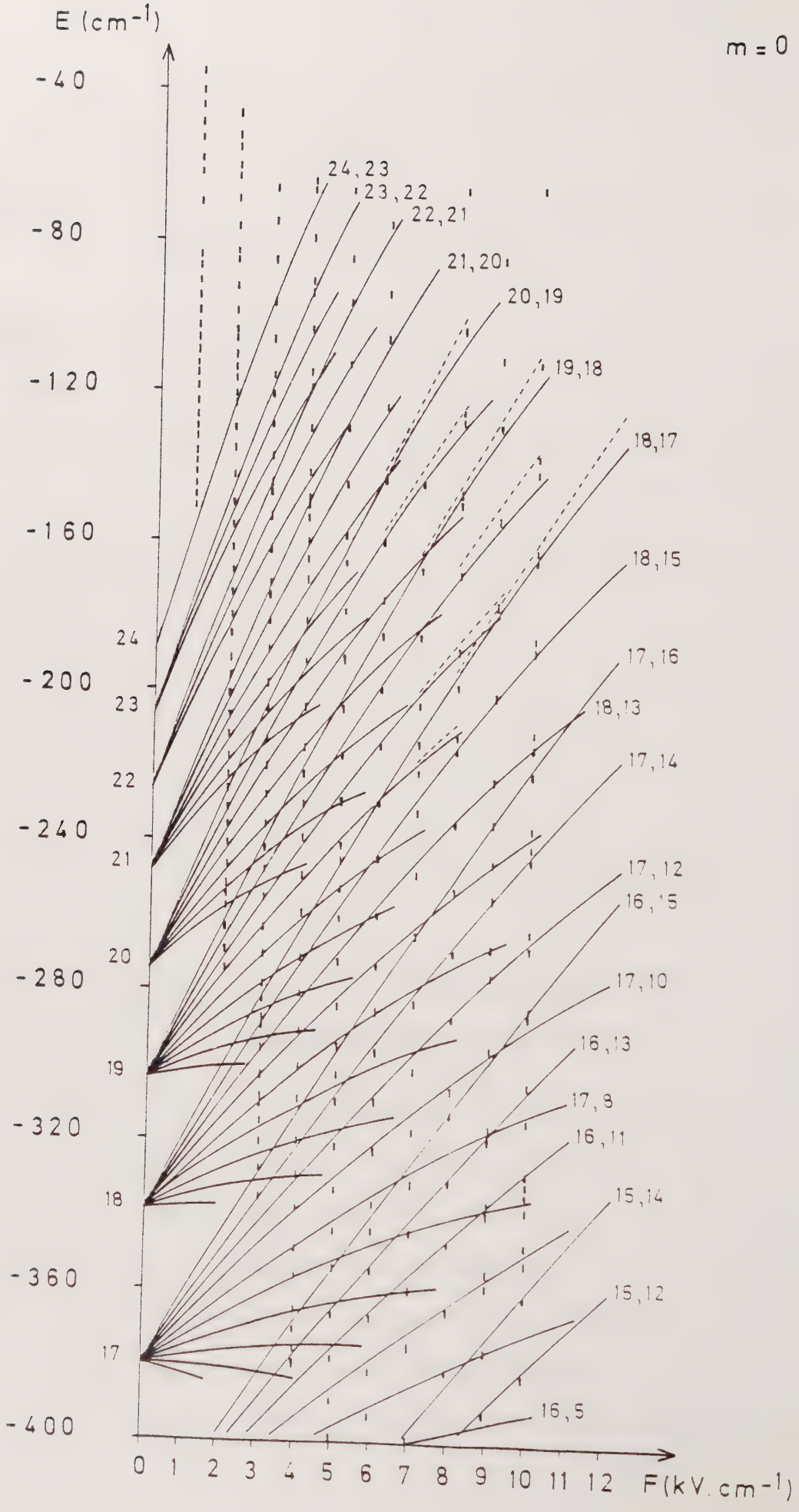

E (cm-1)
m = 0
-40
-80
-120
-160
-200
-240
-280
-320
-360
-400
24,23
23,22
22,21
21,20
20,19
19,18
18,17
18,15
17,16
18,13
17,14
17,12
16,15
17,10
16,13
17,9
16,11
15,14
15,12
16,5
24
23
22
21
20
19
18
17
0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 F(kV.cm-1)

Figure III-12a

Position des pics expérimentaux et des niveaux Stark de l'hydrogène (numérotés (n, n_1-n_2)).

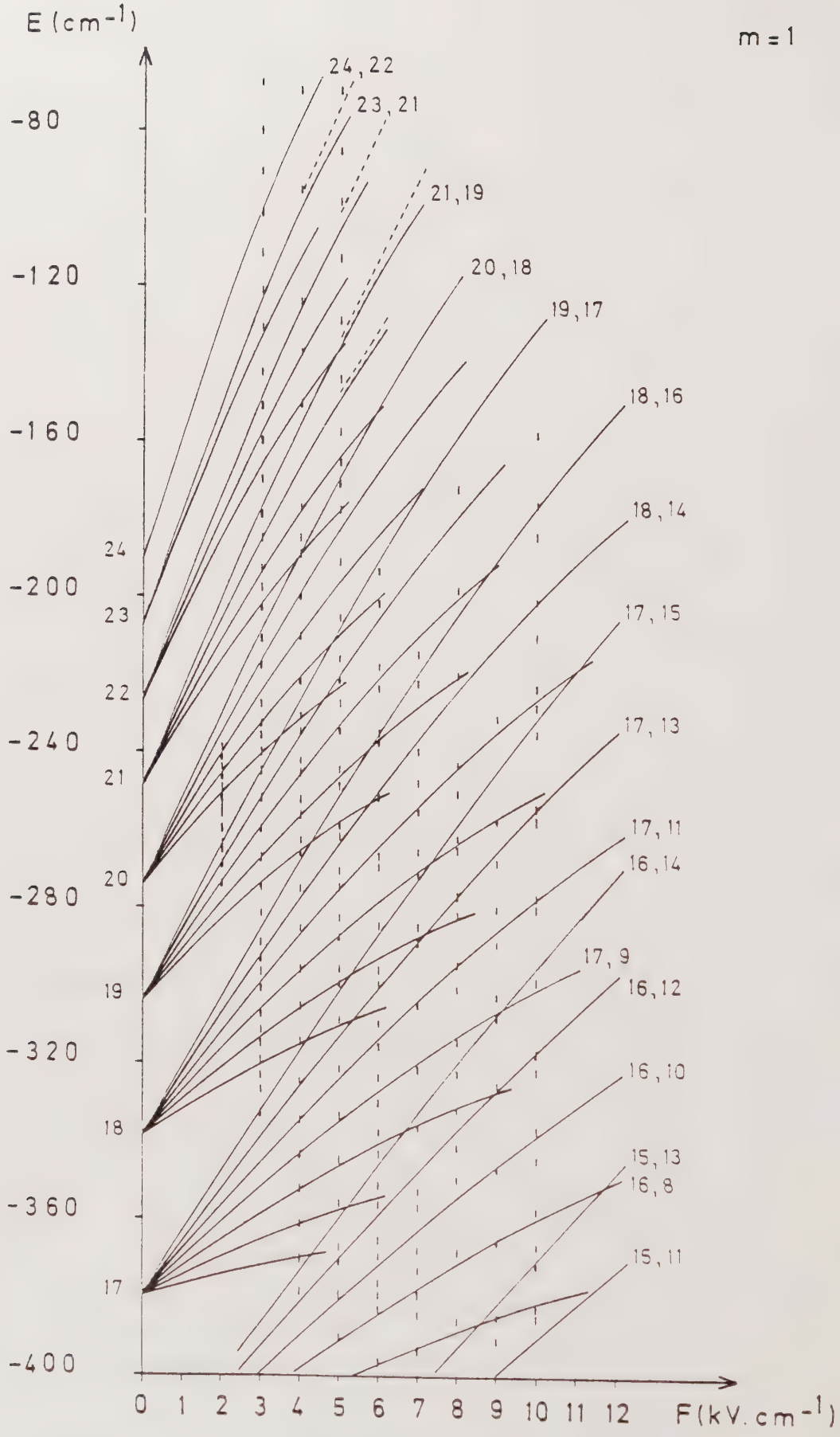


Figure III-12b

troisième ordre (cette valeur ne correspond absolument pas à un taux d'ionisation déterminé, du reste elle est nulle pour les niveaux où $n_1 = n_2$ puisqu'alors le terme du troisième ordre, qui contient le facteur $(n_1 - n_2)$, reste nul à toutes les valeurs du champ).

Nous avons indiqué en tireté le tracé que donne l'approximation géométrique dans quelques cas où ce tracé diffère de façon appréciable du tracé du quatrième ordre.

Dans l'hydrogène, la symétrie particulière au potentiel coulombien permet aux niveaux de nombres quantiques paraboliques différents de se croiser dans le diagramme Stark. Dans un atome non hydrogénoïde, ces niveaux interagissent et, au lieu de croisements, on observe des anticroisements qui ont été mis en évidence dans l'étude de l'effet Stark des alcalins [4].

Les tracés théoriques de l'énergie des niveaux de l'hydrogène en fonction du champ, sur les Figures III-12a et b, ne s'appliquent donc pas à l'ytterbium au voisinage des croisements ; on devrait y observer que les niveaux se repoussent, mais la trame des valeurs expérimentales du champ électrique est trop lâche pour permettre de suivre de tels anticroisements. De toute façon dans l'ytterbium les niveaux Stark autoionisés apparaissent comme des pics très larges et pour être observable leur répulsion devrait être de plusieurs cm^{-1}.

Ces questions d'anticroisements mises à part, on vérifie sur les Figures III-12 que les positions des pics observés correspondent de façon satisfaisante aux positions théoriques des niveaux de l'hydrogène.

Cette concordance est meilleure dans le continuum $m = 0$ (Figure a) que dans le continuum $|m| = 1$ (Figure b), peut être parce que dans ce dernier les pics de photoionisation s'élargissent plus tôt. Dans le continuum $m = 0$ on trouve des domaines où la concordance est même excellente : à 3 $kVcm^{-1}$, de -310 à -180 cm^{-1} ou à 9 $kVcm^{-1}$ de -280 à -200 cm^{-1} les pics observés se trouvent à moins d'un cm^{-1} de niveaux calculés. Dans d'autres domaines les positions mesurées présentent un écart systématique par rapport aux positions théoriques, entre 5 et 7 $kVcm^{-1}$, de -340 à -300 cm^{-1} les pics observés se situent tous plus bas que les niveaux calculés et, pour plusieurs d'entre eux, l'écart dépasse nettement l'incertitude expérimentale : à 7 $kVcm^{-1}$ le pic à -317,6 cm^{-1} se trouve à -4,9 cm^{-1} du niveau théorique $(n,n_1) = (17,13)$. Des remarques analogues peuvent être faites dans le continuum $|m| = 1$ (nous n'avons pas porté sur la Figure III-12b les points expérimentaux donnés par les spectres anomaux $\pi\pi\sigma$ et $\sigma\pi\pi$ via $^1D_2$. Il arrive également qu'un pic expérimental voisin en énergie de deux niveaux théoriques de nombres quantiques principaux différents s'identifie mieux avec le niveau de n le plus élevé alors que celui-ci est en principe le moins stable. Mais cet effet n'est peut être qu'un avatar du précédent. Un exemple de cette situation est donné par le pic expérimental à -285,9cm^{-1}, en $m = 0$ à 6 $kVcm^{-1}$, qui s'identifie plus facilement au niveau $(n,n_1) = (18,13)$ à -286,4 cm^{-1} qu'au niveau plus stable $(17,16)$ à -280,8 cm^{-1}.

Le bilan du dépouillement des spectres de photcionisation en champ électrique de l'ytterbium au-dessous de la limite d'ionisation en champ nul est donc qu'il existe au moins en $m = 0$ une concordance remarquable

entre les positions des pics expérimentaux et celles des niveaux calculés pour l'atome d'hydrogène. Elle permet d'attribuer à chaque pic de photoionisation un couple de nombres quantiques et de suivre les niveaux observés d'une valeur à l'autre du champ électrique appliqué. Ces niveaux correspondent bien aux niveaux les plus stables pour l'ionisation de l'hydrogène, ceux qui à nombre quantique principal n donné ont les nombres quantiques paraboliques n_1 les plus élevés. Inversement les niveaux les plus stables dans l'hydrogène se retrouvent à peu près tous sous forme de pics de photoionisation dans l'ytterbium (il y a très peu de niveaux manquants) et au moins en $m = 0$, l'identification est certaine.

III.4 Niveaux perturbateurs.

Les modifications par rapport au spectre théorique de l'hydrogène décrites dans les paragraphes précédents (élargissement des pics des niveaux quasi-liés, amortissement de la modulation) s'interprètent comme les effets du coeur électronique dans son état fondamental, qui ajoute un terme à symétrie sphérique mais non coulombien au potentiel vu par l'électron extérieur, et sont visibles à toutes énergies.

L'atome possède aussi, au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul, plusieurs niveaux doublement excités qui prcduisent dans les spectres de photcionisation en champ électrique des perturbations localisées en énergie. Ces niveaux doublement excités, qui apparaissent comme niveaux autoionisés, sont de deux sortes : les niveaux situés

au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul sont toujours autoionisés, les niveaux situés en dessous sont en champ nul des niveaux liés et n'apparaissent dans les spectres de photoionisation qu'en champ électrique suffisamment intense pour que le seuil classique d'ionisation soit inférieur à leur énergie ; ils subissent alors le phénomène d'"autoionisation forcée" [45].

Nous avons trouvé des niveaux des deux sortes, l'effet des premiers est décrit au paragraphe III.4.1, celui des seconds au paragraphe III.4.2.

A l'exception des perturbations larges des spectres de photoionisation de $^1S_0$ en dessous de la limite d'ionisation en champ nul, on observe principalement des pics de photoionisation qui apparaissent localement comme la perturbation par un niveau discret d'un fond de photoionisation constant. Ces pics sont symétriques ou asymétriques et de largeurs variées ; les observations les concernant sont rassemblées dans le Tableau III-e, la lettre grecque désignant chaque perturbateur est portée sur les Figures III-1.

La paramétrisation du profil asymétrique produit par le couplage d'un niveau discret et d'un continuum, ou profil de Fano, fait l'objet des rappels de l'Appendice C.

III.4.1 Niveaux autoionisés.

a) Perturbateurs pairs : ces perturbateurs apparaissent dans les spectres de photoionisation à partir du niveau $^1P^o_1$.

Niveaux perturbateurs des spectres de photoionisation en champ électrique permanent de 10 kVcm^{-1} de l'atome d'ytterbium.

Niveau de départ de la photoionisation	Perturbateur	E_{exp} (cm^{-1}) $[E+I]_{exp}$ (cm^{-1}) configuration dominante	Observations
$4f^{14}6s6p\ ^1P^o_1$	α	+545 [50988] $4f^{13}5d6s6p$ J=2	profil de Fano $q \geq 4$, $\frac{1}{2}q\Gamma \simeq 15$ cm^{-1} , $\Gamma \leq 7,5$ cm^{-1}
	β	+991 [51434]	profil de Fano large $q \simeq 2,7$, $\Gamma \simeq 55,7$ cm^{-1}
	γ	+228 [50671]	pic symétrique beaucoup plus fort dans les configurations de polarisation arrivant à un état final de $\|m\|$ égal à 1 ou 2 que dans les configurations donnant $\|m\| = 0$.
	ε	-201 [50242] $4f^{13}5d6s6p$ J=2	pic d'intensité peu dépendante de la polarisation. Légère asymétrie positive ($q > 0$) .
$4f^{14}5d6s\ ^1D_2$	δ	+122,9	pic symétrique
$4f^{14}6s7s\ ^3S_1$	δ	+123 [50566,1] $4f^{13}5d^26s$ J=2	profil de Fano $q \simeq -1,6$, $\Gamma \simeq 1,7$ cm^{-1} Apparaît de la même façon dans le spectre de photoionisation en champ nul.

Le perturbateur à 123 cm^{-1} des spectres de photoionisation à partir de niveaux pairs n'apparaît pas du tout dans les spectres de photoionisation à partir de $4f^{14}6s7s\ ^1S_0$.

TABLEAU III-e

α - Profil de Fano caractérisé. La sensibilité des appareils de détection est adaptée à l'étude du continuum de photoionisation si bien que le pic α apparaît toujours saturé. Nous n'avons donc pas pu en mesurer q , nous ne pouvons donner pour ce paramètre qu'une borne inférieure et nous ne pouvons estimer que la valeur du produit $q\Gamma$ et une borne inférieure de la largeur de la résonance : $\Gamma \leqslant 7{,}5\ cm^{-1}$. Les valeurs trouvées sont compatibles avec les mesures du même profil observé dans le continuum de photoionisation en champ nul , dans l'expérience déjà citée (III.1.2) de spectroscopie d'absorption à deux photons à partir de l'état fondamental [38,39] ; la comparaison est possible parce que dans l'excitation à deux photons c'est principalement le niveau $^1P^o_1$ qui sert de niveau intermédiaire (le niveau $J = 1$ le plus proche de l'énergie atteinte par l'absorption du premier photon est, après $^1P^o_1$, le niveau $4f^{13}(^2F^o_{7/2})5d_{5/2}6s^2$ à 28857 cm^{-1} [33] pour lequel le désaccord est huit fois plus grand) donc les amplitudes de transition à partir de $^1P^o_1$ qui entrent en jeu.

L'expérience de spectroscopie à deux photons donne aussi la position du perturbateur avec une plus grande précision : $E_\alpha = 50988{,}32\ cm^{-1}$. L'étude paramétrique de Wyart et Camus [34] a permis de l'identifier comme un niveau de composante principale $4f^{13}5d6s6p\ ^3P_2$ [38].

β - Profil de Fano très large. L'énergie expérimentale de 51434 cm^{-1} n'est proche de celle d'aucun niveau calculé particulier.

γ - Pic symétrique - Les variations de l'intensité de ce pic en fonction des configurations de polarisations utilisées permettent de l'attribuer à un niveau de $J = 2$. Peut-être ce niveau est-il responsable de

la résonance observée par A. Débarre à 25599,32 cm^{-1} [38], son énergie exacte en champ nul serait alors 50677,54 cm^{-1}.

b) Perturbateur impair : le perturbateur δ apparaît dans les spectres de photoionisation à partir de $^3S_1$ et $^1D_2$ et n'apparaît pas dans le spectre de photoionisation à partir de $^1S_0$. Ceci conduit à penser qu'il s'agit d'un niveau de moment cinétique total $J = 2$. De plus le perturbateur δ présente la particularité remarquable de produire un pic symétrique dans le spectre de photoionisation à partir de $^1D_2$ et un profil de Fanc prononcé dans le spectre de photoionisation à partir de $^3S_1$; une expérience annexe nous a montré que ce profil de Fano s'observe aussi bien dans le spectre de photoionisation en champ nul. Cette particularité s'explique simplement dans l'hypothèse où le perturbateur est essentiellement un niveau triplet : il apparaît fortemert couplé au continuum triplet de photcionisation du niveau $^3S_1$ et, en revanche, complètement déccuplé du continuum singulet de photoionisation du niveau $^1D_2$.

Cette hypothèse est confirmée par le calcul de Wyart et Camus [34], le perturbateur δ s'identifie au niveau de la configuration $4f^{13}5d^26s$ dont l'énergie calculée est 50456 cm^{-1}. Les composantes principales de ce niveau sont

$4f^{13}5d^26s$	$^3P_2$	48,7%	86,5%
	$^3F_2$	6,5%	
	...		
$4f^{13}6p^26s$	$^3P_2$	4,6%	

et ces composantes principales sont bien des états triplets.

III.4.2 Niveaux autoionisés en présence d'un champ électrique (autoionisation forcée).

a) Perturbateurs pairs (spectres de photoionisation à partir de $^1P^o_1$).

ε - Pic légèrement asymétrique. Les variations rapides du fond de photoionisation en dessous de la limite d'ionisation en champ nul rendent cette asymétrie difficile à mesurer, mais elle est nette dans le spectre de photoionisation $\sigma\sigma_\perp$ qui offre un fond de photoionisation beaucoup plus plat que le spectre $\pi\pi$ présenté à la Figure III-1d.

Le niveau responsable de ce pic est sans doute le niveau d'énergie 50244,36 cm^{-1}, perturbateur du niveau $n = 26$ des séries de Rydberg 6snd [31, 35, 38] . Cette valeur de l'énergie est en concordance avec celle que nous mesurons (50242 cm^{-1}) dans la limite de nos incertitudes expérimentales. Ce niveau a été attribué à la configuration $4f^{13}5d6s6p$, avec une composante principale $4f^{13}5d6s6p\ ^3P_2$ (10%) [34].

ζ - Le niveau $J = 0$ de la configuration $4f^{13}5d6s6p$ à 49897,32 cm^{-1} [31] perturbe légèrement les spectres de photoionisation à partir de $^1P^o_1$, sa présence explique la variation brutale de l'intensité des pics de photoionisation $\pi\pi$ autour de l'énergie -550 cm^{-1} (Figure III-1d). La même perturbation est observée sur le spectre $\sigma\sigma_\parallel$, mais les spectres $\pi\sigma$, $\sigma\pi$ et $\sigma\sigma_\perp$ ne sont pas perturbés, ce qui s'explique simplement par le fait que ces configurations de polarisation ne permettent pas d'atteindre un état de moment cinétique nul.

b) Perturbateurs impairs (spectres de photoionisation via S et D).

La caractéristique la plus visible des spectres de photoionisation à

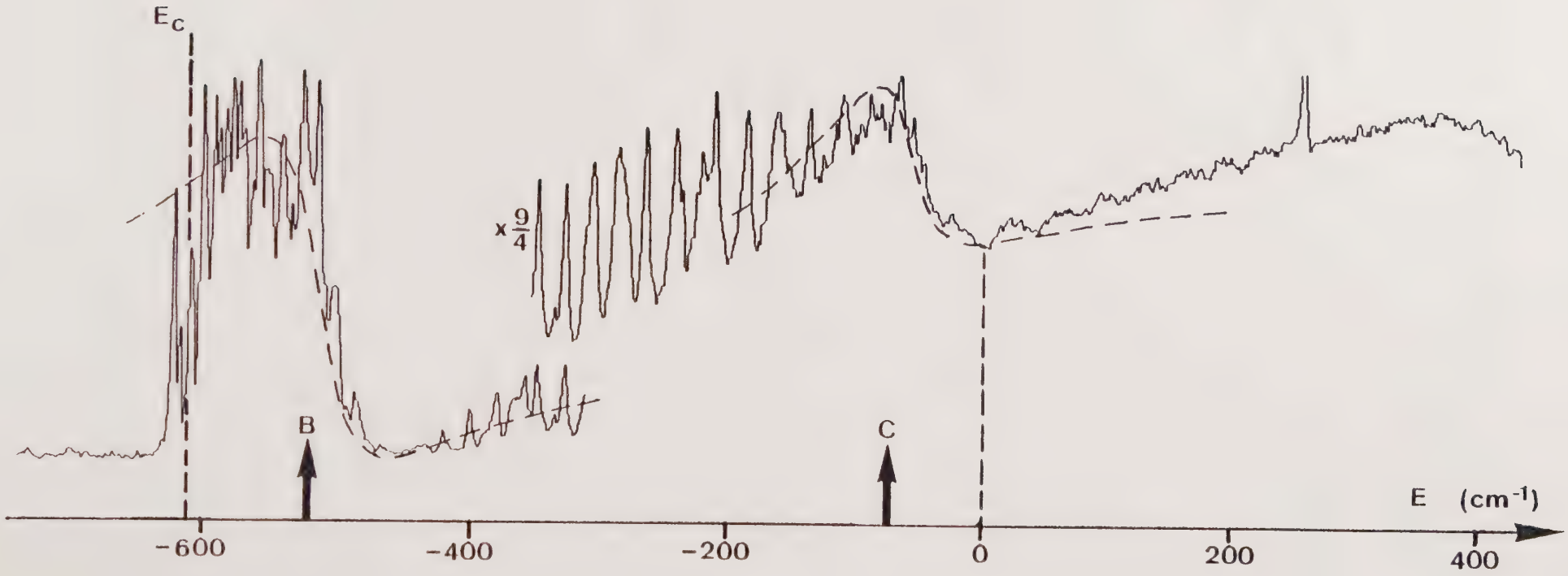


Figure III-13

Spectre de photoionisation π à partir de $^1S_0$ en champ de 10 kVcm^{-1} déjà présenté à la Figure III-1a, auquel on a superposé (en tireté) le tracé des profils de Fano qui rendent compte de la variation rapide du signal au voisinage des perturbateurs B et C. Le signal de photoionisation n'est pas normalisé par rapport au flux de lumière excitatrice et l'accroissement de l'efficacité du colorant utilisé (rhodamine 610) au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul peut expliquer la divergence du spectre expérimental et du profil calculé pour C.

partir de $^1S_0$ (Figure III-1a) est sans doute l'annulation complète du signal vrai (signal dû au laser de longueur d'onde variable) au voisinage d'une énergie E_1 supérieure au seuil classique d'ionisation, telle que $E_1 \simeq -460\ cm^{-1}$. Cette annulation s'accompagne d'une disproportion notable de la section efficace de photoionisation de part et d'autre de E_1 . Un phénomène très comparable a été observé sur des spectres de photoionisation en champ électrique du baryum [15] ; dans les deux cas il est dû à l'autoionisation forcée d'un niveau doublement excité de l'atome, lié en champ nul.

Dans l'ytterbium ce niveau doublement excité a été découvert comme perturbateur en champ électrique nul de la série $6snp\ ^1P_1$ [46] avec une énergie $E = 49920,00\ cm^{-1}$, $E - E_0 = -523,2\ cm^{-1}$, et identifié comme un niveau de $J = 1$ de la configuration $4f^{13}5d^26s$ de composante principale $4f^{13}5d^26s\ ^1P_1^o$ (36%). C'est le perturbateur B de l'analyse par la méthode du défaut quantique a plusieurs voies (M.Q.D.T.) du spectre impair $J = 1$ [31] . La structure observée dans les spectres de photoionisation via $^1S_0$ résulte du couplage de ce niveau discret au continuum dans lequel il est plongé en présence d'un champ électrique. Ce n'est pas un profil de Fano régulier parce que les amplitudes de transition vers le niveau discret et le continuum ainsi que l'amplitude du couplage varient notablement sur la largeur (très grande) de la résonance [47] . Néanmoins la valeur moyenne de la section efficace de photoionisation autour de la résonance est bien représentée par un profil de Fano comme le montre la Figure III-13. Pour le tracé de ce profil les paramètres q et Γ n'ont pas été adaptés mais calculés d'après les résultats donnés par la M.Q.D.T., et la position E_1 du minimum de

photoionisation : nous avons pris pour Γ la largeur à mi-hauteur de la fonction "pourcentage d'appartenance à $4f^{13}5d^{2}6s$ B dans les séries 6snp " [31] et nous en avons déduit q d'après l'intervalle séparant le minimum de photoionisation E_1 de la position du perturbateur E(B), par la formule (cf. Appendice C)

$$q = 2\frac{E(B) - E_1}{\Gamma} .$$

Avec $\Gamma = 100\ cm^{-1}$ il vient $q \simeq -1,26$. Compte tenu de ces contraintes - seule l'amplitude du profil a été ajustée - on observe un bon accord du calcul à l'expérience ; la chute du signal en dessous de E_c n'est pas une chute de la probabilité de transition mais une chute de la probabilité de détection des états excités due à leur faible taux d'ionisation.

L'analyse des séries 6snp J=1 par la méthode du défaut quantique à plusieurs voies mettait également en évidence l'existence d'un perturbateur $4f^{13}5d^{2}6s$ C [31] légèrement en dessous de la limite d'ionisation. A la différence de la perturbation due à B, la perturbation due à C s'étend sur un grand nombre de termes des séries de Rydberg 6snp de sorte qu'aucun des niveaux observés ne peut être directement identifié au perturbateur, et sa position en énergie est déterminée par le calcul M.Q.D.T. :

$$E(C) \simeq 50370\ cm^{-1} .$$

Ce niveau est responsable de la variation rapide de la section efficace de photoionisation via $^1S_0$ autour de la limite d'ionisation en champ nul, comme le montre le tracé, à la Figure III-13, du profil de Fano correspondant, calculé de la même façon qu'au premier cas, avec

$\Gamma = 60\ cm^{-1}$ et $q \simeq -2,44$. L'accord obtenu est moins bon : le profil théorique paraît un peu décalé par rapport à la section efficace expérimentale, mais le calcul M.Q.D.T. manque de données au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul où existe encore un perturbateur $4f^{13}5d^{2}6s\ D$ d'énergie mal déterminée [31].

Le perturbateur D n'apparaît pas dans les spectres de photoionisation en champ électrique du niveau $^{1}S_{0}$, peut-être parce que son effet se superpose à celui du perturbateur C .

Les perturbateurs B et C , de moment cinétique total $J=1$, devraient apparaître également dans les spectres de photoionisation à partir de $^{3}S_{1}$ et $^{1}D_{2}$; on constate que leur influence y est beaucoup plus discrète. B ne perturbe apparemment pas les spectres de photoionisation de $^{3}S_{1}$, sans doute est-il donc un singulet relativement pur, C en revanche y crée encore une légère dépression de la section efficace de photoionisation au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul. Sur les spectres de photoionisation de $^{1}D_{2}$ on observe bien la perturbation due à B mais pas la perturbation due à C . Dans les deux cas ($^{3}S_{1}$ et $^{1}D_{2}$) l'atténuation des perturbations (par rapport à $^{1}S_{0}$) peut aussi être justifiée par le fait que $J=1$ n'est plus la seule valeur de moment cinétique final permise par les règles de sélection.

Pour terminer cette description des perturbations des spectres de photoionisation en champ électrique de $^{1}S_{0}$ signalons que la polarisation de la lumière photoionisante a une influence notable sur la structure détaillée du spectre au voisinage du niveau B . Nous avons déjà

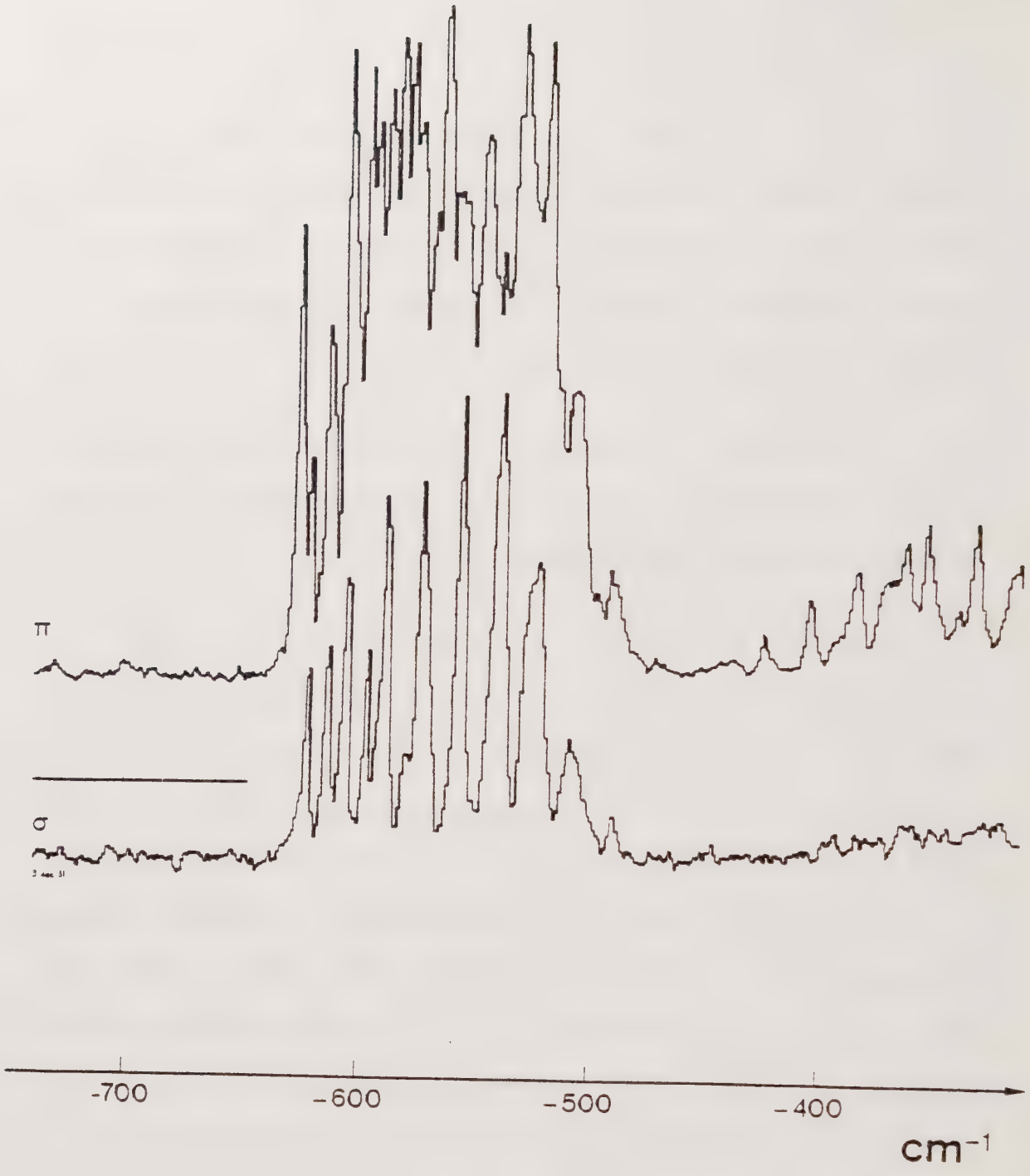


Figure III-12

Spectres de photoionisation en champ électrique de 1 kV/cm⁻¹ du niveau $^1S_0$, dans la région du perturbateur F ; dépendance en polarisation de la structure observée.

remarqué (III.3) que l'identification des pics de photoionisation aux niveaux Stark quasi-liés calculés dans l'hydrogène au quatrième ordre de perturbation ne peut plus être faite en dessous de -400 cm^{-1} de la limite d'ionisation en champ nul et nous comprenons pourquoi : la présence du perturbateur B affecte profondément les amplitudes de transition et bouleverse les pics de photoionisation aussi bien dans le spectre de photoionisation vers $m = 0$ que vers $|m| = 1$. Mais l'aspect qui en résulte pour le spectre de photoionisation entre E_c et E_1 dépend de la polarisation, comme le montre la Figure III-14 : en polarisation π on observe une structure beaucoup plus compliquée qu'en polarisation σ où l'on voit des pics de photoionisation clairement espacés. Cet effet est peut-être aussi simple que le battement qu'on peut voir dans le spectre de photoionisation σ à 4 $kVcm^{-1}$ de la Figure III-11 qui est dû à une disposition particulière des sous-niveaux Stark les uns par rapport aux autres.

La réponse à cette question pourrait être apportée par une étude des spectres de photoionisation dans la même région en champ électrique plus élevé.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

1 - Bilan des résultats obtenus.

Notre étude expérimentale a porté en premier lieu sur la modulation des sections efficaces de photoionisation en champ électrique de l'ytterbium au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. Cette étude ne nécessitait pas une très grande résolution spectrale et nous avons réalisé quatre expériences, en photoionisant l'atome à partir d'états S , P et D , pour déterminer l'influence, sur la modulation, du moment cinétique de l'état de départ, du moment magnétique de l'état de départ et de la polarisation de la lumière photoionisante.

A partir des états S nous avons vérifié les premiers résultats expérimentaux [14] et les calculs théoriques [16, 28, 29] : la modulation n'est importante qu'en polarisation π . La période de modulation suit bien une loi en $F^{3/4}$ mais présente par rapport à la théorie un écart constant de 8 % , inexpliqué.

La photoionisation à partir de l'état P obéit aux règles de sélection calculées dans l'hydrogène : la modulation n'est importante qu'en polarisation $\pi\pi$ [29]. La décroissance du taux de modulation en fonction de l'énergie suit également la loi théorique établie pour l'hydrogène.

Il n'y a pas de prévisions quantitatives auxquelles nous puissions comparer les différents taux de modulation de photoionisation à partir de l'état D, mais cette expérience a fourni un résultat qualitatif important et inédit : le plus fort taux de modulation observé est produit par une lumière photoionisante de polarisation σ.

La théorie prévoit dans les alcalins l'inversion des minimums et des maximums de modulation lorsque les défauts quantiques des séries concernées satisfont à certaines conditions. Dans l'ytterbium, dont la structure est plus compliquée que celle d'un alcalin, nos connaissances actuelles ne nous permettaient pas de prévoir les cas d'apparition de cette inversion, et le fait que nous n'en ayons pas rencontré ne met pas en défaut les calculs théoriques.

Finalement, l'ensemble de nos résultats sur la modulation des sections efficaces de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul s'accorde avec les résultats des études théoriques sur la structure des atomes en champ électrique intense [16,20,25,28,29,30]. Il est définitivement admis que cette modulation ne reflète pas une modulation de la densité d'états finals, mais traduit surtout des propriétés de symétrie de la transition qui dépendent des moments cinétiques de départ et d'arrivée, et de la polarisation de la lumière excitatrice.

Notre étude a également fourni de nombreux résultats complémentaires : en dessous de la limite d'ionisation en champ nul, les niveaux quasi-liés produisent des pics de photoionisation symétriques et s'identifient bien aux niveaux Stark de l'hydrogène ; on peut attribuer à chacun un couple de nombres quantiques (n,n_1) .

Enfin de nombreux perturbateurs, niveaux doublement excités de l'atome, sont apparus dans les spectres de photoionisation, avec des profils variés ; un nouveau niveau (δ) a été identifié au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. En dessous de la limite d'ionisation, certains perturbateurs des séries de Rydberg en champ nul modifient dans un large domaine d'énergie les spectres de photoionisation en champ électrique ; un profil de Fano rend bien compte de la variation moyenne de la section efficace qu'ils induisent, mais seul le calcul complet des amplitudes de transition dans leur voisinage permettrait d'identifier les pics Stark qui y sont observés.

Tels sont les résultats que nous a fournis l'étude des spectres de photoionisation en champ électrique de l'atome d'ytterbium. Il est possible d'aller plus loin. La spectroscopie pure pratiquée jusqu'à présent ne constitue pas la méthode expérimentale ultime d'investigation du phénomène de photoionisation en champ électrique et, parmi les grandeurs introduites dans la théorie, le nombre quantique parabolique n_1 peut apparaître expérimentalement de façon plus directe que comme le numéro d'une résonance de modulation. C'est une expérience destinée à le mettre en évidence que nous décrivons maintenant.

2 - Projet d'une expérience de photoionisation différentielle.

2.1 Principe.

Tous les détecteurs utilisés jusqu'à présent dans les expériences de photoionisation en champ électrique sont des détecteurs sans pouvoir de résolution spatiale, ils reçoivent ou ne reçoivent pas l'électron (ou l'ion) émis et ne donnent que la probabilité d'ionisation de l'atome, sans préciser le mouvement des fragments. Evidemment l'électron libéré est entraîné par le champ électrique et pour le recueillir il suffit d'un détecteur de faible angle solide autour de la direction opposée au champ. Cependant la distribution angulaire des électrons émis (distribution qui varie avec la distance d'observation, si bien qu'on ne peut définir de section efficace différentielle), n'est pas une distribution à maximum unique centré sur cette direction, elle garde la symétrie de révolution autour de Oz, mais elle présente, en fonction de la distance à cet axe, une série de ventres et de noeuds. Dans un plan perpendiculaire au champ électrique, la distribution des électrons reçus est une distribution en anneaux concentriques.

Les auteurs de la remarque [48] interprètent ces anneaux comme la figure d'interférence de trajectoires électroniques correspondant à différents angles d'émission, qui se recoupent à grande distance de l'atome. Nous dirons que, le plan d'observation pouvant être assimilé à une surface de η constant, on y mesure simplement la probabilité de présence de l'électron en fonction de ξ, c'est-à-dire une quantité proportionnelle à $\frac{|\chi_1(\xi)|^2}{\xi}$ dans l'état final.

2.2 Ordres de grandeur.

Le nombre d'anneaux de courant nul est égal au nombre de noeuds de la fonction d'onde en ξ : c'est le nombre quantique parabolique n_1 .

Le rayon ρ_2 du système d'anneaux est le rayon de l'intersection du plan d'observation avec le paraboloïde limitant le mouvement classique, d'équation $\xi = \xi_2$. Si l'observation a lieu à la distance d de l'atome, grande par rapport à ξ_2 , $\rho_2 \simeq \sqrt{2d\xi_2}$. A la limite d'ionisation en champ nul $\xi_2 \simeq 2\sqrt{\frac{Z_1}{F}}$, ρ_2 est donc proportionnel à $F^{-1/4}$.

L'ordre de grandeur de la distance δ entre anneaux successifs est donnée par le quotient $\frac{\rho_2}{n_1}$. Résultat remarquable, cet ordre de grandeur ne dépend pas de l'intensité du champ électrique, simplement

$$\delta \approx \sqrt{d} \quad .$$

C'est la résolution en énergie ΔE avec laquelle on excite l'atome qui fixe une limite inférieure à l'intensité du champ appliqué ; en effet pour que la figure d'interférence ne soit pas brouillée, il faut que $\Delta E << 10F^{3/4}$. Cette condition est satisfaite avec $E = \frac{1}{100}$ cm^{-1} pour des intensités du champ électrique supérieures au volt par centimètre.

Le photodétachement peut fournir des anneaux d'interférence électronique dans les mêmes conditions que la photoionisation, et avec des ordres de grandeur comparables : en prenant $F = 112$ Vcm^{-1} , $E = 10$ cm^{-1} et à 10 cm du noyau, on obtient en photodétachement $\rho_2 = 210$ µm [48] alors qu'en photoionisation $\rho_2 \simeq 289$ µm . Le rayon de la figure d'interférence est un peu plus grand en photoionisation qu'en photodétachement,

mais il faut remarquer qu'elle ne contient pas du tout le même nombre d'anneaux dans les deux cas.

En effet l'électron extérieur d'un atome est beaucoup plus lié que l'électron extérieur d'un ion négatif, si bien qu'en champ électrique, à une énergie donnée par rapport à la limite en champ nul, les nombres quantiques des niveaux ionisés sont beaucoup plus élevés que les nombres quantiques des niveaux détachés. Dans l'exemple précédent, on obtient respectivement soixante-dix anneaux de photoionisation et cinq anneaux de photodétachement.

Les anneaux de photoionisation sont donc beaucoup plus fins que les anneaux de photodétachement et, à 10 cm de l'atome, distance sur laquelle il est déjà difficile de créer un champ électrique uniforme, l'interfrange n'est que de quelques microns. A condition d'exciter les atomes dans un espace de dimensions inférieures (par exemple à l'intersection de faisceaux laser), il devrait cependant être possible, au besoin en utilisant une optique électronique, de mettre en évidence l'existence d'anneaux d'interférence dans une expérience de photoionisation en champ électrique.

3 - Conclusion.

Les calculs effectués sur l'atome d'hydrogène permettent désormais de bien comprendre qualitativement l'aspect des spectres de photoionisation en champ électrique des alcalins, du baryum et de l'ytterbium. Une amélioration de la connaissance de ces spectres pourrait encore être apportée par la comparaison de sections efficaces théoriques aux sections efficaces expérimentales de photoionisation à partir d'un état D, ou par la comparaison quantitative de sections efficaces de photoionisation en champ électrique de l'hydrogène aux sections efficaces exactement calculées.

Nous avons résumé ci-dessus quelques idées sur une expérience de microscopie de photoionisation qui constituerait un prolongement logique aux expériences actuelles de photoionisation en présence d'un champ électrique, en permettant d'y préciser le mouvement de l'électron libéré. La mesure du rayon de la figure d'interférence fournirait de façon originale le potentiel d'ionisation de l'atome, car "il pourrait s'avérer suffisant de mesurer (ce) rayon (...) à une seule valeur de l'énergie, à la différence des méthodes habituelles qui requièrent l'étude de tout un domaine spectral" [48] .

La figure d'interférence donnerait aussi, par le nombre d'anneaux qu'elle contient, une signification concrète au nombre quantique parabolique n_1 ; ce serait, à notre connaissance, la première image directe d'une fonction d'onde atomique.

APPENDICE A

Critères d'évaluation de l'importance de la modulation de la section efficace de photoionisation suivant les polarisations utilisées.

Nous avons vu au Chapitre I que la section efficace totale de photoionisation en champ électrique de l'atome d'hydrogène est la somme des sections efficaces partielles en n_1 . Chaque section efficace partielle n'est importante que dans le domaine où la densité partielle d'états correspondante est appréciable. Au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, les densités partielles d'états présentent chacune une résonance large, dont la position croît lentement avec n_1 (voir Figure I-8). Pour des états finals de nombre quantique magnétique m donné, les sections efficaces partielles sont en quelque sorte découpées dans les densités partielles d'états et peuvent présenter un ou plusieurs noeuds. L'existence de ces noeuds donne aux sections efficaces partielles un profil plus

aigu et favorise donc l'apparition d'une modulation de la section efficace totale. On en déduit pour l'observation d'une forte modulation les critères suivants :

(i) Existence d'un noeud des sections efficaces partielles en $Z_1 = Z_2 = 0,5$ (milieu des densités partielles d'états). On prévoit cette existence par des considérations de symétrie, déjà évoquées au paragraphe I : l'annulation a lieu lorsqu'on photoionise un état de $\ell + |m|$ pair en polarisation π ou un état de $\ell + |m|$ impair en polarisation σ. Dans le cas où on étudie la photoionisation à partir d'un niveau choisi (ℓ est alors fixé) on peut réexprimer ce critère en fonction de la valeur de $|m|$ atteinte dans le continuum ($|m|$ final) : l'annulation a lieu si $|m|$ final a la même parité que ℓ. Dans l'exemple de la photoionisation à partir du niveau $^1D_2$, la modulation doit donc être favorisée quand l'état final est de $|m|$ pair.

(ii) Interférence dans les sections efficaces partielles de photoionisation. A partir d'un état de ℓ donné, l'élément de matrice de transition vers un état du continuum fait intervenir ses composantes de moment cinétique orbital $\ell+1$ et $\ell-1$ si la polarisation et la valeur initiale de m s'y prêtent. Les deux amplitudes de transition correspondantes interfèrent et produisent alors des noeuds dans les sections efficaces partielles ou des valeurs de Z_1 symétriques autour du point milieu $Z_1 = 0,5$ [12].

Ces annulations susceptibles de renforcer la modulation de la section efficace totale ne se produisent toutefois que si la composante de moment cinétique $\ell - 1$ de l'état final contribue effectivement à l'amplitude de

transition, ce qui n'a pas lieu dans deux cas :

- le niveau de départ est un niveau S
- l'état de départ a un nombre quantique magnétique trop élevé : $|m| = \ell$ en polarisation π, ou $|m| \geq \ell - 1$ en polarisation $\sigma_{\text{signe de } m}$.

Dans le cas de la photoionisation à partir du niveau $^1D_2$, seul le deuxième critère entre en compte et, par exemple, l'interférence a toujours lieu lorsque le nombre quantique magnétique initial est nul.

(iii) Nullité du nombre quantique magnétique dans l'état final. C'est un critère très favorable à l'apparition de pics aigus dans les sections efficaces partielles, en raison du profil particulièrement carré des densités partielles d'états $m=0$ (voir Figure I-8).

(iv) Si de plus le continuum $m=0$ est atteint par une excitation π (donc à partir d'un état de $m=0$) le calcul de l'élément de matrice de transition ne fait intervenir qu'une sommation suivant la direction Oz, le recouvrement des fonctions d'onde initiale et finale et de l'opérateur de transition z est très bon, et on observe des taux de modulation particulièrement élevés.

Ces quatre critères peuvent être appliqués à l'expérience de photoionisation via $^1D_2$ pour déterminer qualitativement l'importance de la modulation de la section efficace de photoionisation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul. Pour simplifier cette discussion théorique, nous utilisons des polarisations circulaires pures σ_+ ou σ_-, et nous en donnons les résultats dans le Tableau A.

TABLEAU A

Configuration de polarisation	$\|m\|$ final	m final nul ? et dernier étage π ?		Noeud par interférence?	Noeuds par symétrie ?
$\pi\ \pi\ \pi$ $\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\pi$	0	oui	oui	oui	oui
$\pi\ \pi\ \sigma$ $\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\sigma$	1	non		oui	non
$\pi\ \sigma^{\pm}\pi$ $\sigma^{\mp}\pi\ \pi$	1	non		oui	non
$\pi\ \sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$ $\sigma^{\mp}\pi\ \sigma^{\mp}$	0	oui	non	oui	oui
$\pi\ \sigma^{\pm}\sigma^{\pm}$ $\sigma^{\pm}\pi\ \sigma^{\mp}$	2	non		non	oui
$\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\pi$	2	non		non	oui
$\sigma^{\pm}\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}$	1	non		oui	non
$\sigma^{\pm}\sigma^{\mp}\sigma^{\pm}$	3	non		non	non

Le classement final des configurations de polarisations ne fait intervenir que la valeur de $|m|$ atteinte dansle continuum (sauf pour $|m| = 0$ où l'on doit distinguer si cette valeur est atteinte par excitation σ ou π). Par ordre décroissant pour l'importance de la modulation on trouve successivement :

- les configurations de $|m|$ final nul où le dernier étage a la polarisation π . Ces configurations répondent favorablement aux quatre critères ;

- les configurations de $|m|$ final nul où le dernier étage a la

polarisation σ , qui répondent favorablement à trois critères ;

- les configurations de $|m|$ final égal à 1, qui répondent oui au seul critère que les sections efficaces partielles présentent des noeuds par interférence ;

- les configurations de $|m|$ final égal à 2, un oui aussi, mais les sections efficaces partielles ne présentent qu'un noeud par symétrie ;

- les deux configurations de $|m|$ final égal à 3 qui ne répondent favorablement à aucun des quatre critères.

On prévoit ainsi pour la modulation de la section efficace totale de photoionisation à partir de $^1D_2$ que son taux doit être une fonction décroissante de la valeur de $|m|$ atteinte dans le continuum.

APPENDICE B

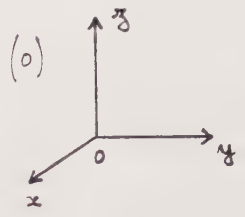
Calcul des états de moment cinétique atteints dans une excitation à étages où plusieurs étages ont la polarisation σ .

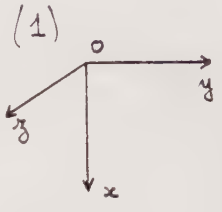
I - Principe.

Les polarisations σ sont des polarisations rectilignes ; on va faire tourner l'axe de quantification de façon à n'avoir à chaque étage qu'à étudier la transition produite par une excitation π .

2 - Etat du niveau $^1D_2$ peuplé par une excitation $\sigma\sigma$.

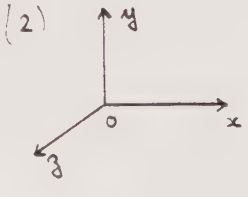
a) Cas $\sigma\sigma_{\parallel}$: soit (0) le système d'axes initial (représenté par la figure ci-contre), Oz étant toujours l'axe de quantification. L'état de départ de l'excitation, en notation $|jm\rangle$ est $|00\rangle_0$. Nous supposons que les polarisations σ utilisées sont (rectilignes) parallèles à Ox , ce sont donc des polarisations π dans le système d'axes (1) obtenu à partir de (0) par rotation d'un quart de tour autour de Oy . L'état de départ est aussi $|00\rangle_1$. Le premier étage de l'excitation, π_1 (avec des notations évidentes) peuple l'état $|10\rangle_1$ de $^3P_1$, le deuxième également π_1 peuple l'état $|20\rangle_1$ de $^1D_2$. Pour connaître la décomposition de cet état sur la base des états propres de moment cinétique dans le système d'axes initial, il suffit d'exécuter la rotation inverse de la première ; on obtient que



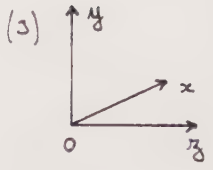


$$\sigma\sigma_{\parallel} \text{ peuple l'état } \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{2}}\,|2{+}2\rangle - \frac{1}{2}\,|20\rangle + \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{2}}\,|2{-}2\rangle \text{ de } {}^1D_2 \,.$$

b) Cas $\sigma\sigma_{\perp}$: on suppose cette fois la polarisation σ du premier étage parallèle à Ox et celle du deuxième étage parallèle à Oy . Le premier étage peuple $|10\rangle_1$; pour étudier la transition de deuxième étage nous devons encore faire tourner le système d'axes de référence. Une rotation d'un quart de tour autour de Oz nous amène au système (2), dans lequel l'état intermédiaire de $^3P_1$ est



encore $|10\rangle_2$. Une rotation d'un quart de tour autour de Oy donne le système (3) dans lequel le deuxième étage a la polarisation π_3 . L'état intermédiaire de $^3P_1$ se récrit $\frac{1}{\sqrt{2}}|1+1\rangle_3 - \frac{1}{\sqrt{2}}|1-1\rangle_3$.



Le deuxième étage de l'excitation peuple donc, eu égard à la règle de symétrie selon laquelle $\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$ est multiplié par $(-1)^{j_1+j_2+j_3}$ lorsqu'on change les signes de m_1 , m_2 et m_3 , l'état $\frac{1}{\sqrt{2}}|2+1\rangle_3 - \frac{1}{\sqrt{2}}|2-1\rangle_3$ du niveau $^1D_2$. Un quart de tour autour de Oz , puis un quart de tour autour de Oy nous ramènent au système d'axes initial (0) et on voit que

$$\boxed{\sigma\sigma_\perp \text{ peuple l'état } \frac{1}{\sqrt{2}}|2+2\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}|2-2\rangle \text{ de } ^1D_2} \ .$$

Bien qu'a priori, dans le système d'axes (0) une configuration $\sigma\sigma$ soit une superposition de $\sigma^+\sigma^-$ et de $\sigma^-\sigma^+$, en $\sigma\sigma_\perp$ on arrive à éliminer par interférence destructive les deux voies $\sigma^+\sigma^-$: $\sigma\sigma_\perp$ équivaut à $\sigma^-\sigma^-$.

3 - Etat du continuum atteint dans les configurations $\pi\sigma\sigma$.

a) Cas $\pi\sigma\sigma_\parallel$: les états atteints et leur décomposition dans les différents systèmes d'axes sont décrits par le Tableau B-1 .

Matrices de rotation des axes d'un quart de tour autour de Oy dans la base des états propres autour de Oz.

J = 1

m / m'	1	0	−1
1	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{2}$
0	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$\frac{1}{\sqrt{2}}$
−1	$\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{2}$

J = 2

m / m'	2	1	0	−1	−2
2	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{2}$	$\sqrt{\frac{3}{8}}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$
1	$-\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$
0	$\sqrt{\frac{3}{8}}$	0	$-\frac{1}{2}$	0	$\sqrt{\frac{3}{8}}$
−1	$-\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	$-\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$
−2	$\frac{1}{4}$	$-\frac{1}{2}$	$\sqrt{\frac{3}{8}}$	$-\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$

J = 3

m / m'	3	2	1	0	−1	−2	−3
3	$\frac{1}{8}$	$\frac{\sqrt{6}}{8}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$\frac{\sqrt{5}}{4}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$\frac{\sqrt{6}}{8}$	$\frac{1}{8}$
2	$-\frac{\sqrt{6}}{8}$	$-\frac{1}{2}$	$-\frac{\sqrt{10}}{8}$	0	$\frac{\sqrt{10}}{8}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{\sqrt{6}}{8}$
1	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$\frac{\sqrt{10}}{8}$	$-\frac{1}{8}$	$-\frac{\sqrt{3}}{4}$	$-\frac{1}{8}$	$\frac{\sqrt{10}}{8}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$
0	$-\frac{\sqrt{5}}{4}$	0	$\frac{\sqrt{3}}{4}$	0	$-\frac{\sqrt{3}}{4}$	0	$\frac{\sqrt{5}}{4}$
−1	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$-\frac{\sqrt{10}}{8}$	$-\frac{1}{8}$	$\frac{\sqrt{3}}{4}$	$-\frac{1}{8}$	$\frac{\sqrt{10}}{8}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$
−2	$-\frac{\sqrt{6}}{8}$	$\frac{1}{2}$	$-\frac{\sqrt{10}}{8}$	0	$\frac{\sqrt{10}}{8}$	$-\frac{1}{2}$	$\frac{\sqrt{6}}{8}$
−3	$\frac{1}{8}$	$-\frac{\sqrt{6}}{8}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$-\frac{\sqrt{5}}{4}$	$\frac{\sqrt{15}}{8}$	$-\frac{\sqrt{6}}{8}$	$\frac{1}{8}$

Système d'axes	(0)	(1)
état de $^1S_0$	$\|00\rangle$	
état de $^3P_1$	$\|10\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|1+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|1-1\rangle$
état de $^1D_2$		$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$
composantes de l'état final contribuant à la transition	$\|10\rangle$ $\frac{1}{\sqrt{2}}[\|2+2\rangle - \|2-2\rangle]$ $\frac{1}{4}[\sqrt{5}\|3+2\rangle - \sqrt{6}\|30\rangle + \sqrt{5}\|3-2\rangle]$	$\frac{1}{\sqrt{2}}[\|1+1\rangle - \|1-1\rangle]$ $\frac{1}{\sqrt{2}}[\|2+1\rangle + \|2-1\rangle]$ $\frac{1}{\sqrt{2}}[\|3+1\rangle - \|3-1\rangle]$

TABLEAU B-1

b) Cas $\pi\sigma\sigma_\perp$: les états atteints et leur décomposition dans les différents systèmes d'axes sont décrits dans le Tableau B-2 .

4 - Etat du continuum atteint dans la configuration $\sigma\pi\sigma_\parallel$.

Bien que nous n'ayons pas comparé expérimentalement cette configuration à la configuration $\sigma\pi\sigma_\perp$ nous donnons dans le Tableau B-3 la décomposition des états atteints aux étapes successives de l'excitation (qui nous a donné les plus forts taux de modulation au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul).

$\pi\sigma\sigma_\perp$	(0)	(1)	(2)	(3)
état de $^1S_0$	$\|00\rangle$			
état de $^3P_1$	$\|10\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|1+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|1-1\rangle$		
état de $^1D_2$		$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+2\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-2\rangle$
composantes de l'état final contribuant à la transition	$\frac{1}{2\sqrt{2}}[\|2+2\rangle + \sqrt{3}\|20\rangle + \|2-2\rangle]$ $\frac{1}{\sqrt{2}}[-\|3+2\rangle + \|3-2\rangle]$			$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+2\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-2\rangle$ $\frac{1}{\sqrt{2}}\|3+2\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|3-2\rangle$

TABLEAU B-2

$\sigma\pi\sigma_{\parallel}$	(0)	(1)
état de $^1S_0$	$\|00\rangle$	$\|00\rangle$
état de $^3P_1$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}\|1+1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|1-1\rangle$	$\|10\rangle$
état de $^1D_2$	$-\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$
composantes de l'état final contribuant à la transition	$\|10\rangle$ $-\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+2\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-2\rangle$ $\frac{\sqrt{10}}{8}\|3+2\rangle - \frac{\sqrt{3}}{4}\|30\rangle + \frac{\sqrt{10}}{8}\|3-2\rangle$	$\frac{1}{\sqrt{2}}\|1+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|1-1\rangle$ $\frac{1}{\sqrt{2}}\|2+1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}\|2-1\rangle$ $\frac{1}{\sqrt{2}}\|3+1\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\|3-1\rangle$

TABLEAU B-3

APPENDICE C

Paramètres des profils asymétriques.

Nous rappelons ici les notations et les résultats de Fano [10].

On cherche à calculer la probabilité de transition par un opérateur T d'un système atomique caractérisé par l'hamiltonien H, d'un état discret stationnaire $|i\rangle$ à un continuum d'états finals, en fonction de l'énergie atteinte E.

Le continuum est constitué d'un continuum d'états $|\Psi_E\rangle$ et d'un état discret $|\varphi\rangle$ qu'on peut considérer comme "états propres d'ordre zéro" de l'hamiltonien H, tels que :

$$\langle\varphi|H|\varphi\rangle = E_\varphi$$

$$\langle\Psi_{E''}|H|\Psi_{E'}\rangle = E'\delta(E''-E') \quad .$$

Mais l'état discret est couplé au continuum d'états $|\Psi_E\rangle$ et

$$\langle\Psi_{E'}|H|\varphi\rangle = V_{E'} \quad .$$

Les états propres exacts $|\Phi_E\rangle$ de l'hamiltonien H s'écrivent comme combinaisons linéaires des $|\Psi_E\rangle$ et de $|\varphi\rangle$; le couplage transforme l'état discret en $|\Phi\rangle$

$$|\Phi\rangle = |\varphi\rangle + P\int dE' \frac{V_{E'}|\Psi_{E'}\rangle}{E-E'} \qquad (\text{"P" pour "partie principale"}).$$

En posant

$$F(E) = P\int dE' \frac{|V_{E'}|^2}{E-E'}$$

$$\varepsilon(E) = \frac{E - E_\varphi - F(E)}{\pi|V_E|^2}$$

$$q = \frac{\langle\Phi|T|i\rangle}{\pi V_E^*\langle\Psi_E|T|i\rangle}$$

on obtient le rapport p de la probabilité de transition observée à la probabilité théorique de transition vers le continuum non perturbé :

$$p = \frac{|\langle\Phi_E|T|i\rangle|^2}{|\langle\Psi_E|T|i\rangle|^2} = \frac{(q+\varepsilon)^2}{1+\varepsilon^2} \quad .$$

Si $\left|\frac{d|V_E|^2}{dE}\right| \ll 1$, c'est-à-dire si $|V_E|^2$ varie suffisamment lentement, on peut donner la largeur Γ de la résonance observée autour de l'état discret $\Gamma = 2\pi|V_E|^2$, ε peut être récrit $\varepsilon = \frac{E - E_\varphi - F}{\frac{1}{2}\Gamma}$ et la durée de vie de l'état $|\varphi\rangle$ pour l'autoionisation dans le continuum $|\Psi_E\rangle$ est $\frac{\hbar}{\Gamma}$.

Si de plus $\langle\Psi_E|T|i\rangle$ peut être considéré comme constant, alors q est un paramètre indépendant de l'énergie, sans dimension, qui caractérise l'asymétrie de la résonance.

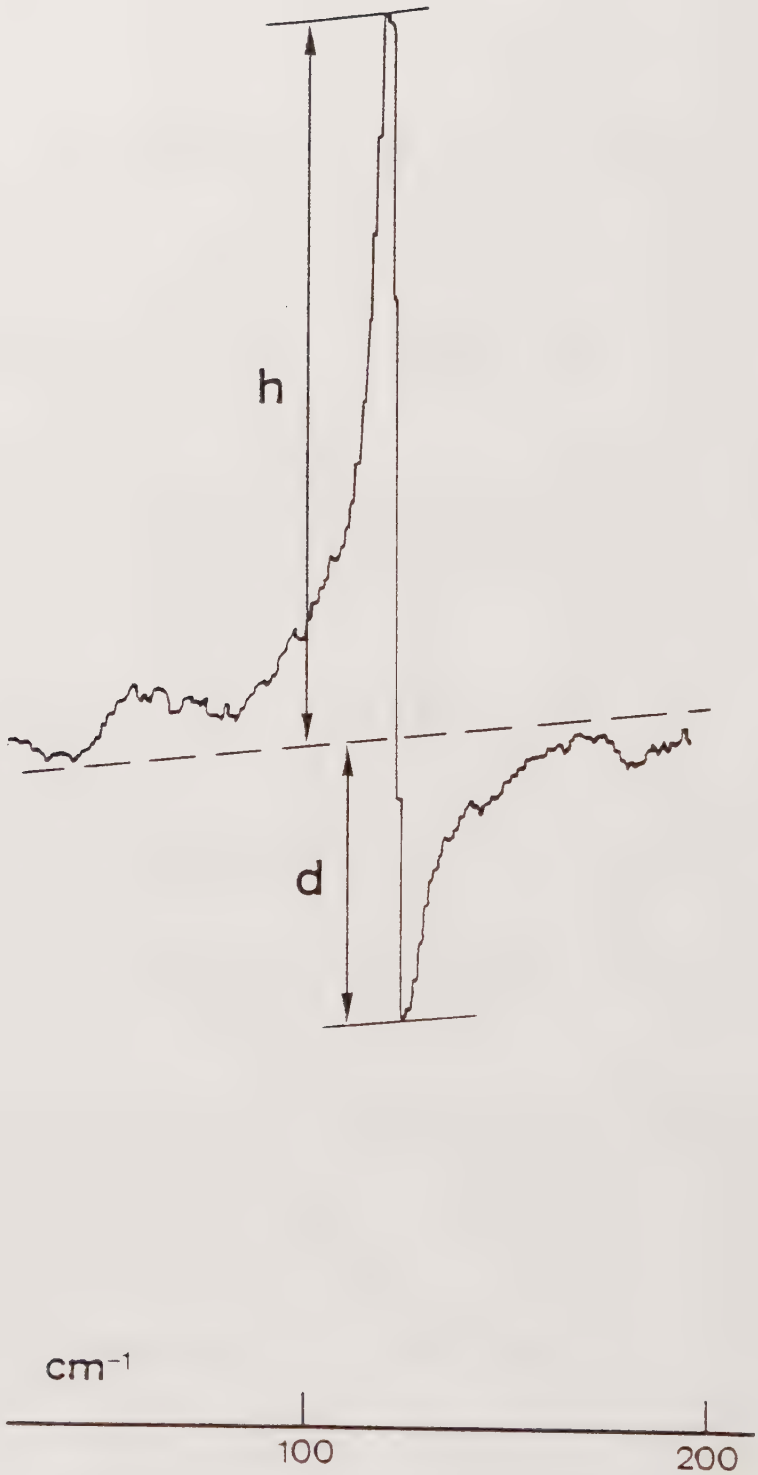


Figure I

Paramètres h et d du profil de Fano dû au perturbateur δ dans le spectre de photoionisation à partir de $^2S_{\frac{1}{2}}$ (extrait de la Figure III-1b).

La même famille de courbes $p = \frac{(q+\varepsilon)^2}{1+\varepsilon^2}$ décrit dans ces conditions tous les profils asymétriques rencontrés dans les cas de couplage d'un niveau discret à un continuum.

A la résonance	$\varepsilon = 0$	$p = q^2$
Au maximum	$\varepsilon = \frac{1}{q}$	$p = q^2 + 1$
Au minimum	$\varepsilon = -q$	$p = 0$.

Le fond de photoionisation correspond à $\varepsilon = \infty$, $p = 1$.

On en déduit la façon de mesurer les paramètres d'un profil de Fano : si h est la hauteur du maximum, d la profondeur du minimum par rapport au fond, alors $q = \pm \frac{h}{d}$, q étant positif si le minimum se trouve avant le maximum, négatif dans le cas contraire. Si on connaît la position du niveau discret (voir III.4.2), Γ se déduit facilement de l'intervalle ΔE qui le sépare du minimum : $\frac{\Delta E}{\frac{1}{2}\Gamma} = q$ d'où $\Gamma = \frac{2\Delta E}{q}$. C'est cette méthode de dépouillement que nous avons appliquée au profil asymétrique ε des spectres de photoionisation à partir de $^3S_1$ (Fig. C). Γ peut aussi se déduire de l'intervalle minimum - maximum $\Delta E'$: $2\Delta E' = \Gamma(q + \frac{1}{q})$

d'où $\Gamma = \frac{2\Delta E'}{q + \frac{1}{q}}$

ou $\Gamma = 2 \frac{\sqrt{dh}}{d+h} |\Delta E'|$.

Lorsque l'énergie E ne suffit plus à définir les états quantiques du continuum, quand on a "plusieurs continua" dont un seul est couplé au niveau discret, le minimum dans la résonance n'est pas nul - simplement il s'ajoute à la probabilité de transition un fond non perturbé par la résonance - c'est en général la situation observée.

REFERENCES

[1] S. Feneuille and P. Jacquinot, Advances At. Mol. Phys. 17, 99 (1981).

[2] D. H. Tuan, S. Liberman and J. Pinard, Optics Commun. 18, 533 (1976).

[3] C. Fabre, P. Goy and S. Haroche, J. Phys. B 10, L183 (1977).

[4] M. G. Littman, M. L. Zimmerman, T. W. Ducas, R. R. Freeman and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. 36, 788 (1976) ;
M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. A 20, 2251 (1979).

[5] T. H. Jeys, G. W. Foltz, K. A. Smith, E. J. Beiting, F. G. Kellert, F. B. Dunning and R. F. Stebbings, Phys. Rev. Lett. 44, 390 (1980) ;
T. H. Jeys, G. B. McMillian, K. A. Smith, F. B. Dunning and R. F. Stebbings, Phys. Rev. A 26, 335 (1982).

[6] J. H. M. Neijzen and A. Dönszelmann, J. Phys. B 15, L87 (1982).

[7] M. G. Littman, M. M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. 41, 103 (1978).

[8] S. Feneuille, S. Liberman, J. Pinard et P. Jacquinot, C. R. Acad. Sci. B 284, 291 (1977).

[9] S. Feneuille, S. Liberman, J. Pinard and A. Taleb, Phys. Rev. Lett. 42, 1404 (1979).

[10] U. Fano, Phys. Rev. 124, 1866 (1961).

[11] T. S. Luk, L. DiMauro , T. Bergeman and H. Metcalf, Phys. Rev. Lett. 47, 83 (1981).

[12] Abdelouahab Taleb, Thèse de Doctorat d'Etat, Université Paris-Sud (1982).

[13] S. Feneuille, S. Liberman, E. Luc-Koenig, J. Pinard and A. Taleb, Phys. Rev. A 25, 2853 (1982).

[14] R. R. Freeman, N. P. Economou, G. C. Bjorklund and K. T. Lu, Phys. Rev. Lett. 41, 1463 (1978).

P. R. Freeman and N. P. Economou, Phys. Rev. A 20, 2356 (1979).

[15] W. Sandner, K. A. Safinya and T. F. Gallagher, Phys. Rev. A 23, 2448 (1981).

[16] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, Phys. Rev. Lett. 43, 921 (1979).

[17] D. R. Hartree, Proc. Cambridge Phil. Soc. 24, 89 (1928).

[18] P. Jacquinot, S. Liberman and J. Pinard, in "Etats atomiques et moléculaires couplés à un continuum. Atomes et molécules hautement excités", 215, Editions du C.N.R.S., Paris (1977).

[19] W. E. Cooke and T. F. Gallagher, Phys. Rev. A 17, 1226 (1978).

[20] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, J. Phys. B 13, 1743 (1980).

[21] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, Quantum mechanics of one- and two-electron atoms, Springer-Verlag, Berlin (1957).

[22] H. J. Silverstone, Phys. Rev. A 18, 1853 (1978).

[23] S. P. Alliluev and I. A. Malkin, Sov. Phys. - J.E.T.P. 39, 627 (1974).

[24] V. D. Kondratovich and V. N. Ostrovskii, Sov. Phys. - J.E.T.P. 52, 198 (1981).

[25] D. A. Harmin, Phys. Rev. A 24, 2491 (1981).

[26] D. R. Herrick, J. Chem. Phys. 65, 3529 (1976).

[27] A. R. P. Rau, J. Phys. B 12, L193 (1979).

A. R. P. Rau, Comments Atom. Mol. Phys. 10, 30 (1980).

[28] E. Luc-Koenig and A. Bachelier, J. Phys. B 13, 1769 (1980).

[29] D. A. Harmin, Phys. Rev. A 26, 2656 (1982).

[30] D. A. Harmin, Phys. Rev. Lett. 49, 128 (1982).

[31] M. Aymar, A. Débarre and O. Robaux, J. Phys. B 13, 1089 (1980).

[32] J. S. Ross and K. Murakawa, Phys. Rev. 128, 1159 (1962).

[33] Atomic Energy Levels, National Bureau of Standards, Washington (1978).

[34] J.-F. Wyart and P. Camus, Physica Scripta 20, 43 (1979).

[35] Luc Barbier, Thèse de Troisième Cycle, Université Paris-Sud (1979).

[36] L. Barbier and R.-J. Champeau, J. Physique 41, 947 (1980).

[37] T. W. Hänsch, Appl. Optics 11, 895 (1972).

[38] Anne Débarre-Cordier, Thèse de Troisième Cycle, Université Pierre-et-Marie-Curie, Paris (1979).

[39] P. Camus, A. Débarre and C. Morillon, J. Phys. B 13, 1073 (1980).

[40] M. V. Mirza and W. W. Duley, Optics Commun. 28, 179 (1979).

[41] C. B. Collins, S. M. Curry, B. W. Johnson, M. Y. Mirza, M. A. Chellehmalzadeh, and J. A. Anderson, D. Popescu, I. Popescu, Phys. Rev. A 14, 1662 (1976).

[42] M. Guido and G. Balducci, J. Chem. Phys. 57, 5611 (1972).

[43] J. Killingbeck, Rep. Prog. Phys. 40, 963 (1977).

[44] O. Goscinski and E. Brandas, Phys. Rev. 182, 43 (1969).

[45] W. R. S. Garton, W. H. Parkinson and E. M. Reeves, Proc. Phys. Soc. London 80, 860 (1962).

[46] P. Camus et F. S. Tomkins, J. Physique 30, 545 (1969).

[47] W. Sandner, K. A. Safinya and T. F. Gallagher, Phys. Rev. A 24, 1647 (1981).

[48] Y. N. Demkov, V. D. Kondratovich and V. N. Ostrovskii, J.E.T.P. Lett. 34, 403 (1981).

Le présent mémoire est principalement le fruit des efforts de tous ceux qui m'ont guidé avec patience dans ce premier travail de recherche.

Ma reconnaissance va d'abord aux enseignants du D.E.A. de Physique Atomique et Moléculaire qui m'ont fait connaître et aimer cette discipline, à Serge FENEUILLE et Sylvain LIBERMAN qui m'ont accueilli avec bienveillance dans leur laboratoire pour effectuer ma thèse de troisième cycle.

René-Jean CHAMPEAU l'a dirigée avec humour et générosité, et m'a montré les ficelles du métier. Je lui dois de terminer cette thèse dans le temps que nous nous étions donné, et j'y tenais beaucoup.

Jacques PINARD m'a initié à l'utilisation des amplificateurs de lumière à émission stimulée de rayonnement, je lui suis profondément reconnaissant de m'avoir communiqué une partie de son enthousiasme pour la manipulation de ces appareils.

Chercheurs, ingénieurs, techniciens, administratives du Laboratoire Aimé Cotton ont tous contribué à cette étude, ne serait-ce que par l'atmosphère exceptionnellement propice à la recherche dont ils m'ont entouré. Je tiens à remercier plus particulièrement MM. RICHARD et LEROUX qui ont construit suivant nos caprices toute la partie électronique du montage expérimental, ainsi que Mmes CHEVILLARD, GARCES, VIALLE, MM. CABARET et RAYNAL qui se sont chargés de l'illustration de ce mémoire. Michèle HOFFMAN nous a apporté une aide précieuse dans la mise au point de l'expérience et a également dessiné un grand nombre de spectres expérimentaux.

Je voudrais encore exprimer ma gratitude à Madame FONTAINE qui a assuré avec art la réalisation matérielle de ce mémoire dans des conditions difficiles, et à Christian DELSART dont le soutien quotidien et l'extraordinaire disponibilité m'ont énormément aidé à mener à bien cette étude.

A tous, ainsi qu'à Michel GAILLARD et Serge HAROCHE pour l'intérêt qu'ils ont pris à cette thèse en acceptant de faire partie du jury, je tiens à exprimer ici mes plus vifs remerciements.

Résumé

Le sujet de cette thèse est l'étude des spectres de photoionisation en champ électrique de l'atome d'ytterbium, dans une expérience d'excitation à étages par lasers.

L'objet initial de cette étude était de caractériser la modulation qui apparaît en présence d'un champ électrique dans les sections efficaces de photoionisation atomiques au-dessus de la limite d'ionisation en champ nul, c'est-à-dire dans une région spectrale où l'électron optique ne peut pas être lié au noyau.

Pour la photoionisation à partir d'états S et P, nous avons vérifié les premiers résultats expérimentaux et les calculs théoriques : la modulation n'est importante que lorsque l'état final a un nombre quantique magnétique nul, et que la lumière photoionisante a la polarisation π par rapport à la direction du champ permanent. La réalisation d'une expérience de photoionisation à partir d'un état D nous a de plus permis d'observer cette modulation dans de nouvelles conditions de polarisation.

La période de modulation suit une loi en $F^{3/4}$, comme prévu par la théorie, et il est définitivement établi que la modulation n'est pas le reflet d'une modulation de densité d'états finals dans le continuum, mais traduit surtout des propriétés de symétrie de la transition qui dépendent aussi de l'état de départ et de la polarisation.

En complément, le calcul des niveaux Stark de l'hydrogène au quatrième ordre de perturbation permet d'identifier les pics de photoionisation observés au-dessous de la limite d'ionisation en champ nul, qui résultent du couplage des niveaux quasi-liés de l'atome au continuum, par le cœur électronique.

Enfin, l'ytterbium possède, au voisinage de la limite d'ionisation en champ nul, de nombreux niveaux doublement excités qui perturbent les spectres de photoionisation en champ électrique. Dans certains cas la perturbation s'étend sur un large domaine d'énergie, un profil de Fano rend alors bien compte des variations observées.